



# HELVETICA PHYSICA ACTA

SOCIETATIS PHYSICAE HELVETICAE  
COMMENTARIA PUBLICA

VOLUMEN XXXIII

FASCICULUS PRIMUS

BASILEAE • IN AEDIBUS BIRKHAEUSER  
MCMLX

**P. HUBER**

Physik. Anstalt der Universität  
Basel

**J. ROSSEL**

Inst. de Physique de l'Université  
Neuchâtel

**A. MERCIER**

Physik. Institut der Universität  
Bern

**A. PERRIER**

Institut de Physique de  
l'Université  
Lausanne

**P. SCHERRER**

Physikalisches Institut der  
Eidg. Techn. Hochschule  
Zürich

**J. WEIGLE**

Institut de Physique de  
l'Université  
Genève

Redaktor: Prof. Dr. M. FIERZ

Physikalische Anstalt der Universität Basel, Klingelbergstrasse 82

---

Die HELVETICA PHYSICA ACTA sind Eigentum der Schweizerischen Physikalischen Gesellschaft. Sie erscheinen jährlich in 6—8 Heften.

Die *Manuskripte* sind zu senden an Herrn Prof. Dr. M. Fierz in Basel. Die Arbeiten (grösster zulässiger Umfang 32 Seiten) müssen spätestens 4 Wochen vor Erscheinen des betreffenden Heftes bei der Redaktion sein. Sie erscheinen in der Regel in der Reihenfolge des Eingangs bei der Redaktion. Die Autoren erhalten 50 Separatabzüge unentgeltlich.

*Abonnementspreise:* In der Schweiz Fr. 52.—, im Ausland SFr. 64.—.

*Einzelhefte:* SFr. 14.—.

Die Bestellungen sind an die Buchhandlungen oder an den BIRKHÄUSER VERLAG in Basel zu richten.

---

Les HELVETICA PHYSICA ACTA sont propriété de la Société Suisse de Physique et paraissent chaque année en 6—8 fascicules.

Les *manuscrits* sont à envoyer à M. le professeur Dr. M. Fierz à Bâle. Les mémoires, qui ne doivent pas dépasser 32 pages d'impression, doivent parvenir à la rédaction au plus tard 4 semaines avant la date fixée pour la publication. Dans la règle, ils paraissent dans l'ordre d'arrivée à la rédaction. Les auteurs reçoivent gratuitement 50 tirés à part.

*Prix d'abonnement:* Fr. 52.— pour la Suisse, SFr. 64.— pour l'étranger.

Le prix de chaque fascicule séparé est de Frs. 14.—.

Adresser les commandes aux libraires ou aux ÉDITIONS BIRKHÄUSER à Bâle.



## Messung der Eindringtiefe an supraleitenden Hohlkörpern

von R. Jaggi\*) und R. Sommerhalder\*)  
Laboratorium für Festkörperphysik ETH, Zürich

(15. VIII. 1959)

*Abstract.* The penetration depth of magnetic fields in superconducting tin films was measured.

The films, 400–2000 Å thick, were evaporated in vacuo and had the form of hollow cylinders. A magnetic field of 60 c/s was externally applied parallel to the axis of the cylinder and the magnetic field which penetrated through the films into the interior of the hollow body was detected.

It is found that there are departures from the law  $\lambda(T) = \lambda(0) [1 - (T/T_c)^4]^{-1/2}$ , which are in agreement with LEWIS extension of the Casimir-Gorter two fluid model and with the theory of BARDEEN, COOPER, and SCHRIEFFER.

The absolute value of the London penetration depth at  $T = 0^\circ\text{K}$  is found to be  $\lambda(0) = 700 \pm 100$  Å for the thickest films and increases with decreasing film thickness.

### 1. Einleitung

MEISSNER und OCHSENFELD 1933 haben entdeckt, dass sich einfach zusammenhängende makroskopische Supraleiter wie absolut diamagnetische Körper verhalten. In ihrem Innern verschwindet somit die magnetische Induktion vollständig.

F. und H. LONDON 1935 haben phänomenologische Gleichungen zur Beschreibung des supraleitenden Zustandes aufgestellt. Diese fassen bei isotropen Körpern alle Materialeigenschaften in einer temperaturabhängigen Supraleitungskonstanten  $\lambda$  zusammen und sagen aus, dass eine an der Oberfläche des Supraleiters vorhandene magnetische Induktion in seinem Innern wie  $\exp(-x/\lambda)$  verschwindet, wo

$$\lambda = (\Lambda/\mu_0)^{1/2} \quad (1.1)$$

und  $\mu_0$  die Induktionskonstante ist. Die Grössenordnung der Eindringtiefe  $\lambda$  kann mit Hilfe einer Beschleunigungstheorie, die die supraleitenden Elektronen als reibungsfreies Gas behandelt, abgeschätzt werden zu

$$\lambda^2 = \frac{m}{\mu_0 n e^2}, \quad (1.2)$$

wo  $m$  resp.  $e$  Masse resp. Ladung des Elektrons und  $n$  die Konzentration der supraleitenden Elektronen bedeuten. Für Zinn ergibt sich beispiels-

\*) Jetzt IBM-Forschungslaboratorium, Zürich.

weise  $\lambda = 870 \text{ \AA}$ , wenn 0,1 Supraleitungselektronen pro Atom angenommen werden. Die gleiche Grössenordnung gilt für die übrigen Metalle und ist stets bestätigt worden ausser in einem neueren Experiment an Cadmium (HEIN und STEELE 1957). Demgegenüber zeigte Cadmium in den hochfrequenten Impedanzmessungen von KHAIKIN 1958 kein aussergewöhnliches Verhalten.

PIPPARD 1953 hat Eindringtiefmessungen an Zinn-Indium-Legierungen ausgeführt und mit einem Indiumgehalt von wenigen Prozenten eine Verdoppelung der Eindringtiefe gegenüber reinem Zinn festgestellt. Dieser Effekt könnte nach Gl. (1.2) so interpretiert werden, dass das Zulegieren von wenig Indium zu Zinn die Konzentration der supraleitenden Elektronen äusserst stark beeinflusst. Statt dessen hat PIPPARD 1953 vorgeschlagen, die Londonsche Theorie zu erweitern und in die Elektrodynamik des supraleitenden Zustandes Streuprozesse einzuführen. Im Sinn der Pippardschen Vorstellungen ist auch in chemisch reinen Substanzen die Eindringtiefe nicht nur vom Material abhängig. Jede Begrenzung der freien Weglänge, sei es durch Fehlordnung oder durch geringe Abmessungen der Körper, muss ebenfalls zu einer Vergrösserung der Eindringtiefe führen.

Bis jetzt sind an den Elementen Blei, Quecksilber, Zinn, Indium, Thallium, Aluminium und Cadmium Eindringtiefen gemessen worden. Die Informationen, die man bezüglich Temperaturabhängigkeit und Absolutwert der Eindringtiefe besitzt, sind zum Teil quantitativ noch nicht völlig gesichert; über die Anisotropieeffekte weiss man nur wenig, ebenso über die Form der Eindringkurve. Diese Bilanz weist auf erhebliche experimentelle Schwierigkeiten hin, die z. B. von SHOENBERG 1952 diskutiert worden sind. In Tabelle 1 sind Richtwerte der Eindringtiefe der Elemente am absoluten Nullpunkt tabelliert. Man muss sich dabei vergegenwärtigen, dass diese Messungen an sehr unterschiedlichen Proben und mit ganz verschiedenen Messmethoden ausgeführt wurden; zusätzlich unterscheiden sich noch die zur Auswertung der Messungen herangezogenen Theorien.

Von BARDEEN, COOPER und SCHRIEFFER 1957 ist kürzlich eine mikroskopische Theorie der Supraleitung entwickelt worden. Obwohl in bezug auf den Meissnereffekt die Entwicklung noch im Fluss ist, ist doch die Überprüfung der durch diese Theorie geforderten Temperaturabhängigkeit der Eindringtiefe von Interesse.

## 2. Überblick über neuere Experimente

*2.1. Makroskopische Proben.* Eindringtiefmessungen an makroskopischen Körpern haben den Vorteil, dass sie mit Einkristallen ausgeführt werden können. Andererseits würde die Angabe von absoluten Werten die Kenntnis der Probengeometrie bis zu einer Genauigkeit von mindestens



Tabelle 1  
Eindringtiefe  $\lambda(0)$  supraleitender Elemente bei  $0^\circ\text{K}$

Element	$\lambda(0)$ in Å	Literatur
Pb	390	LOCK 1951
Hg	380–450 Anisotropieeffekt	LAURMANN und SHOENBERG 1949
Sn	500	PIPPARD 1947
	520	LAURMANN und SHOENBERG 1949
	500	LOCK 1951
	400	CHAMBERS 1956
	470–600 Anisotropieeffekt	SCHAWLOW und DEVLIN 1959 a und private Mitteilung
In	640	LOCK 1951
Tl	920	ZAVARITSKII 1952
Al	500	FABER und PIPPARD 1953
Cd	ca. $10^5$	HEIN und STEELE 1957
	1300	KHAIKIN 1958

$1:10^6$  bedingen, so dass nur *Änderungen* der Eindringtiefe mit der Temperatur (auch dem Magnetfeld oder der Kristallorientierung) messbar sind. In verschiedenen Experimenten (PIPPARD 1947, LAURMANN und SHOENBERG 1949, PIPPARD 1950 und 1953, SHARVIN 1952, FABER und PIPPARD 1955, CHAMBERS 1956), die an Zinn, Quecksilber, Aluminium und den Legierungen Zinn-Indium und Zinn-Aluminium durchgeführt wurden, ist die Temperaturabhängigkeit der Eindringtiefe in Übereinstimmung mit dem Gesetz

$$\lambda(T) = \lambda(0)[1 - (T/T_c)^4]^{-1/2} \quad (2.1)$$

befunden worden. Die Verwendung der Gl. (2.1) gestattet dann durch Extrapolation des Temperaturverlaufs auf  $T = 0^\circ\text{K}$  die Bestimmung absoluter Werte der Eindringtiefe.

PIPPARD 1958 bemerkt indessen, dass die experimentelle Evidenz zwar konsistent ist mit dem Gesetz nach Gl. (2.1), aber ungenügend es zu beweisen.

SCHAWLOW und DEVLIN 1959 verwenden eine Hochfrequenzvariante der Casimirmethode ( $\nu = 10^5\text{ Hz}$ ) und messen mit hoher Präzision den Temperaturgang der Eindringtiefe an Zinn. Sie finden erstmals Abweichungen von Gl. (2.1) bei tiefen Temperaturen, welche die Berechtigung der Extrapolation auf  $T = 0^\circ\text{K}$  unter Zugrundelegung dieser Gleichung fragwürdig erscheinen lassen. Ihre Resultate können interpretiert

werden, wenn eine Energielücke im Spektrum der Elektronenenergien angenommen wird (LEWIS 1956, BARDEEN, COOPER und SCHRIEFFER 1957).

Absolute Messungen sind bei jeder Temperatur möglich mit Proben, bei denen mindestens eine Dimension vergleichbar ist mit der Eindringtiefe, also an Kolloiden, Kapillardrähten oder Filmen. Mit kleiner werdenden Abmessungen wachsen jedoch die experimentellen Schwierigkeiten der Probenherstellung an, die Frage nach der Güte der Probenoberflächen tritt immer stärker in den Vordergrund und auch die theoretischen Unsicherheiten in der Kenntnis der für die Supraleitung wesentlichen Streuprozesse machen sich unangenehm bemerkbar.

*2.2. Kolloide.* WHITEHEAD 1957 hat die Suszeptibilitätsmessung an kolloidalem Quecksilber nach SHOENBERG 1940 wiederholt und die Teilchengrößenverteilung elektronenmikroskopisch untersucht. Er findet die Temperaturabhängigkeit der Eindringtiefe nach Gl. (2.1), jedoch mit ungefähr doppelt so grossem Wert  $\lambda(0)$  wie LAURMANN und SHOENBERG 1949. Das Resultat wird als Evidenz zugunsten der nichtlokalen Theorie gedeutet.

Ausser Quecksilber ist bis jetzt nur Blei in kolloidaler Form verwendet worden. DOLL 1958 findet an supraleitenden Bleikugeln mit Durchmessern von  $10^{-6}$  bis  $10^{-5}$  cm keinen messbaren gyromagnetischen Effekt und kommt zum Schluss, dass die mittlere Eindringtiefe einen mindestens dreimal grösseren Wert haben muss als den von LOCK 1951 an wesentlich dickeren Filmen gefundenen.

*2.3. Dünne Drähte.* Suszeptibilitätsmessungen an Kapillardrähten aus Quecksilber sind von DESIRANT und SHOENBERG 1948 ausgeführt worden. Die dünnsten Drähte, die hergestellt werden konnten, hatten Durchmesser von etwa  $10^{-3}$  cm und waren für absolute Messungen noch zu dick. Zudem zeigte das in Glas eingefrorene Quecksilber eine verschmierte Phasenumwandlung.

LUTES 1957 verwendet Zinn-Wiskers mit Durchmessern von 0,7 bis  $5,0 \cdot 10^{-4}$  cm, schliesst aber indirekt aus der Messung des kritischen Feldes auf die Eindringtiefe. Er findet  $\lambda(0)$  stark abhängig von der freien Weglänge im normalleitenden Zustand in qualitativer Übereinstimmung mit PIPPARD 1953 und für die reinste Probe quantitative Übereinstimmung mit LAURMANN und SHOENBERG 1949.

*2.3. Filme.* Gleichfalls indirekt haben ZAVARITSKII 1951 und 1952 an Zinn-, Indium- und Thalliumfilmen, ferner KHUKHOREVA 1957 an Quecksilberfilmen die Eindringtiefe gemessen. Die Beobachtung des Widerstandseinsatzes im Magnetfeld bedingt Unsicherheiten in den Resultaten, die bei Filmen mit Verwendung direkterer Messmethoden umgangen werden können (SHOENBERG 1953).



LOCK 1951 hat die Suszeptibilität ebener supraleitender Filme bestimmt. Bei dieser Methode ist eine sehr präzise Justierung der Filme notwendig, weil ihre Entmagnetisierungsfaktoren parallel und senkrecht zur Filmebene grössenordnungsmässig verschieden sind. LOCK 1951 benötigt zur Überwindung der Justierungsschwierigkeiten und zur Erreichung eines genügenden Messeffekts einen Stapel von rund 100 Filmen. Seine Messungen ergeben für Zinn und Indium die Temperaturabhängigkeit nach Gl. (2.1), Blei wird nur bei  $4,2^\circ\text{K}$  untersucht. Der Absolutwert  $\lambda(0)$  von Zinn stimmt überein mit dem von LAURMANN und SHOENBERG 1949. Die Filmdicken variieren von  $2320\text{ \AA}$  bis  $7900\text{ \AA}$  für Zinn,  $1970\text{ \AA}$  bis  $9580\text{ \AA}$  für Indium und  $1070\text{ \AA}$  bis  $7600\text{ \AA}$  für Blei.

SCHAWLOW 1958 findet in niederfrequenten Transmissionsmessungen mit hohlzylindrischen Filmen aus Zinn, deren Dicke  $660\text{ \AA}$  resp.  $935\text{ \AA}$  beträgt, rund zweimal grössere Absolutwerte als LOCK 1951.

GLOVER und TINKHAM 1957 messen in Transmissionsversuchen im Mikrowellengebiet an Zinn- und Blei-Filmen, deren Dicke auf  $20\text{--}100\text{ \AA}$  geschätzt wird, etwa zehnfache Londonsche Werte für die Eindringtiefe. Ihre Resultate lassen sich verstehen, wenn die Begrenzung der freien Weglänge durch die Filmdicke nach PIPPARD 1953 berücksichtigt wird. GLOVER und TINKHAM 1957 bestätigen zusätzlich die Vorstellungen der nichtlokalen Theorie durch Transmissionsmessungen an Filmen, die sich nur durch verschiedene Fehlordnung im Gitter unterscheiden.

Wir haben mit der gleichen Methode wie SCHAWLOW 1958 gearbeitet (JAGGI und SOMMERHALDER 1958) und absolute Eindringtiefenmessungen an Zinnfilmen in Abhängigkeit von Temperatur und Schichtdicke ausgeführt. Über die Resultate haben wir in einer kurzen Notiz berichtet (JAGGI und SOMMERHALDER 1959). Das experimentell erfasste Temperaturintervall erstreckt sich vom Sprungpunkt bis zu  $T = 1,35^\circ\text{K}$ , so dass die Gültigkeit der Gl. (2.1) schärfer geprüft werden konnte als in verschiedenen früheren Experimenten. ERLBACH, GARWIN und SARACHIK 1958 haben eine ähnliche hochfrequente Messanordnung angekündigt.

### 3. Dünnwandige Hohlkörper im Magnetfeld

3.1. *Londonsche Theorie für Hohlzylinder und Hohlkugel.* Legt man an einen unendlich langen supraleitenden Hohlzylinder mit Innenradius  $R$  und Wandstärke  $\delta$  ein niederfrequentes longitudinales Magnetfeld

$$H_a \exp(i\omega t)$$

an, so dringt ins Innere ein abgeschwächtes homogenes Magnetfeld

$$H_i \exp(i\omega t)$$

ein. Nach der Londonschen Theorie lässt sich in der Wand des Hohlzylinders das Vektorpotential  $A$  aus der Differentialgleichung

$$\Delta A - (\mu_0/\lambda) \cdot A = 0 \quad (3.11)$$

berechnen, wo  $\Lambda$  die Supraleitungskonstante bedeutet, die nach Gl. (1.1) mit der Eindringtiefe verknüpft ist, und hieraus die magnetische Induktion

$$\mathbf{B} = \text{rot } \mathbf{A} \quad (3.12)$$

wie auch die Dichte  $\mathbf{j}_s$  des Suprastroms

$$\mathbf{j}_s = - (1/\Lambda) \cdot \mathbf{A}. \quad (3.13)$$

Bei Zylindersymmetrie ist das Vektorpotential azimuthal gerichtet und nur vom Radius  $r$  abhängig. Auf der Oberfläche des Hohlzylinders müssen die Randbedingungen

$$\begin{aligned} A_\theta(R) &= \mu_0 R H_i / 2 \\ dA_\theta(R)/dr &= \mu_0 H_i \\ dA_\theta(R + \delta)/dr &= \mu_0 H_a \end{aligned} \quad (3.14)$$

erfüllt werden.

Wenn die Wandstärke  $\delta$  klein ist im Vergleich zum Radius  $R$  des Hohlzylinders, so wird das Verhältnis der inneren zur äusseren Feldstärke

$$H_i/H_a = \left( \frac{R}{2\lambda} \sin \frac{\delta}{\lambda} + \cos \frac{\delta}{\lambda} \right)^{-1}. \quad (3.15)$$

Der zweite Summand in Gl. (3.15) ist vernachlässigbar, wenn

$$(R/\lambda) \cdot (\delta/\lambda) \gg 1. \quad (3.16)$$

Wählt man  $R = 1$  cm, so ist die Bedingung (3.16) auch bei Filmen von nur wenigen Atomlagen Dicke stets erfüllt ausser in unmittelbarer Umgebung des Sprungpunktes.

Mit  $\lambda = 10^3$  Å berechnet man für eine Schichtdicke  $\delta = 50$  Å ein Abschwächungsverhältnis  $H_i/H_a = 4 \cdot 10^{-4}$ , und für  $\delta = 2000$  Å wird  $H_i/H_a = 5,5 \cdot 10^{-6}$ .

Die maximale Stromdichte stimmt für Schichtdicken  $\delta \gg \lambda$  mit derjenigen des Vollzylinders überein, während sie für  $\delta \ll \lambda$  um den Faktor  $\lambda/\delta$  grösser wird als im Vollzylinder. Demzufolge nimmt die kritische Feldstärke mit abnehmender Schichtdicke ab.

Legt man an den gleichen Hohlzylinder ein transversales Magnetfeld, so gilt (3.15) unverändert. Für eine Hohlkugel wäre in Gl. (3.15) nur die 2 durch eine 3 zu ersetzen.

3.2. *Nichtlokale Theorie des Hohlzylinders.* PIPPARD 1953 ersetzt Gl. (3.11) durch die Differential-Integral-Gleichung

$$\Lambda \mathbf{A} - \frac{3\mu_0}{4\pi\xi_0\Lambda} \int \frac{\mathbf{r}'[\mathbf{A}(\mathbf{r} + \mathbf{r}') \cdot \mathbf{r}'] e^{-r'/\xi}}{r'^4} d\mathbf{r}' = 0, \quad (3.21)$$

worin  $\xi_0$  die Kohärenzlänge in einem grossen reinen Kristall und  $\xi$  die Kohärenzlänge in einem grossen Kristall mit Störstellen bedeuten. Die Integration erstreckt sich über den unendlich ausgedehnten Raum. Auf der Oberfläche des Supraleiters ist die Nebenbedingung zu erfüllen, dass kein Suprastrom ins Äussere austreten kann, weiter ist eine Annahme



nötig über den Bruchteil der Supraleitungselektronen, der in der Oberfläche diffus resp. elastisch gestreut werden soll.

Exakte Lösungen von Gl. (3.21) sind nur in wenigen Spezialfällen bekannt.

PETER 1958 behandelt den Fall des dünnwandigen Hohlzylinders ( $\delta/\xi \ll 1$ ) im longitudinalen Magnetfeld mit Hilfe eines Iterationsverfahrens unter Annahme vollständig diffuser Streuung in der Oberfläche. Er findet

$$H_i/H_a = \frac{8\lambda\xi_0}{3\mu_0 R \delta^2} \cdot \Phi(\delta/\xi) \quad (3.22)$$

mit

$$\Phi(\delta/\xi) = \left[ \lg \frac{\xi}{\delta} + 0,423 + \frac{2\delta}{3\xi} - \frac{\delta^2}{12\xi^2} \left\{ \lg \frac{\xi}{\delta} + 2,006 \right\} \right]^{-1}.$$

Die experimentelle Bestimmung der Supraleitungskonstanten  $\lambda$  aus (3.22) setzt die Kenntnis der Parameter  $\xi$  und  $\xi_0$  voraus.  $\xi_0$  kann aus der Theorie von BARDEEN, COOPER und SCHRIEFFER 1957, die am absoluten Nullpunkt mit der Pippardschen übereinstimmt, entnommen werden. Für Zinn gilt  $\xi_0 = 2500 \text{ \AA}$ .  $\xi$  wird behelfsmässig berechnet aus der Beziehung

$$1/\xi = 1/\xi_0 + 1/l, \quad (3.23)$$

wo  $l$  die mittlere freie Weglänge der (freien) Elektronen im normalleitenden Zustand bedeutet, die aus Restwiderstandsmessungen bestimmt werden kann.

Setzt man Gl. (3.22) als richtig und ihre Parameter als bekannt voraus, so lässt sich mit dem nach Gl. (3.22) berechneten Wert von  $H_i/H_a$  unter Verwendung von Gl. (3.15) eine effektive Londonsche Eindringtiefe definieren, die mit abnehmender Filmdicke anwächst.

Im Grenzfall dickwandiger Hohlzylinder ( $\delta/\xi \gg 1$ ) kann man auf die Berechnungen zurückgreifen, die sich auf den supraleitenden Halbraum beziehen (PIPPARD 1953, SONDHEIMER 1952).

#### 4. Aufbau der Apparatur

4.1. *Schaltung*. Fig. 1 zeigt das Schema unserer Schaltung. Ein Niederfrequenzgenerator von 30 Watt Ausgangsleistung, der bei der Frequenz  $\nu = 60 \text{ Hz}$  arbeitet, speist über einen Vorschaltwiderstand  $W$  und ein Ampèremeter  $A$  eine Feldspule  $P$ . In ihrem Magnetfeld befindet sich als Probe ein zylindrischer Metallfilm und darin eine Induktionsspule  $S$  hoher Windungsfläche. Die in  $S$  induzierte Spannung lässt sich kompensieren, indem im Primärkreis am Widerstand  $R$  eine Spannung abgegriffen und mit der Kapazitätsdekade  $C$  und dem festen Widerstand  $\varrho$  abgeschwächt wird. Die Bedingung  $2\pi\nu(R + \varrho)C \ll 1$  muss erfüllt sein, damit die Phasenlage der Kompensationsspannung richtig ist. Als Nullinstrument dient ein Vibrationsgalvanometerverstärker  $G$  nach BUSCH

1954. Er besitzt bei  $\nu = 60$  Hz eine Spannungsempfindlichkeit von  $1 \cdot 10^{-9}$  V/mm·m und hat eine Bandbreite von 0,25 Hz. Die lichtelektrische Verstärkung erfolgt mit einem Photomultiplier. Parallel zum Galvanometerverstärker ist ein Kathodenstrahloszillograph geschaltet, der

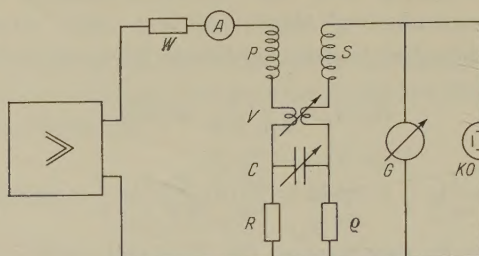


Fig. 1 Schaltschema

$W = 100 \Omega$ ,  $A$  = Ampèremeter,  $P$  = Primärschule,  $S$  = Sekundärschule,  
 $V$  = Variometer,  $C = 10^{-4}$ – $1,1 \mu F$ ,  $R = 3,81$  oder  $9,77 \Omega$ ,  $\varrho = 0,111 \Omega$ ,  
 $G$  = Galvanometerverstärker,  $KO$  = Kathodenstrahloszillograph

breitbandig eine Spannungsempfindlichkeit von einigen Mikrovolt besitzt. Ein kleines Variometer  $V$  wird zur Eliminierung von Störspannungen benützt, die vom Generator aus direkt auf den Verstärker eingestreut werden.

Der Widerstand  $W$  ist hochohmig im Vergleich zu den Impedanzen von Feldspule und Ampèremeter. Er vernichtet somit einen grossen Teil der Generatorleistung. Dafür ist aber die erwähnte Einstreuung des Generators auf den Verstärker unabhängig von der Impedanz (Temperatur) der Feldspule und unabhängig vom Innenwiderstand des Ampèremeters auf allen verwendeten Messbereichen.

4.2. *Kryostat.* Fig. 2 zeigt die Anordnung der Spulen und des Films im Heliumkryostaten  $D$ . Die Feldspule  $P$  (Länge 40 mm, Innenradius 34 mm, Aussenradius 57 mm) ist auf Plexiglas gewickelt, damit Wirbelströme vermieden werden und hat 437 Windungen aus Kupferdraht von 1 mm Durchmesser. Die Induktionsspule  $S$  besitzt ebenfalls einen Plexiglasträger. Die Wicklung (Länge 20 mm, Innendurchmesser 2 mm, Ausendurchmesser 7 mm) besteht aus Kupferdraht von 0,05 mm Durchmesser; ihre Windungsfläche ist von der Grössenordnung  $10^4$ – $10^5$  mm<sup>2</sup>. Sie ist auf ein Neusilberrohr  $N$  gesteckt, das mit Hilfe einer Führung, die in Fig. 2 nicht gezeichnet ist, in bezug auf die Feldspule  $P$  und den Film  $F$  zentriert wird. Die Stromzuführungen  $Z$  zur Induktionsspule  $S$  werden fein verdreht in der Achse des Neusilberrohrs  $N$  aus dem Kryostaten geführt. Zudem sind sie in der Nähe der Feldspule  $P$  durch das 20 cm lange und 1 mm dicke supraleitende Bleirohr  $B$  vor störenden Induktionsspannungen geschützt.



Das Magnetfeld der Erde wird vor jedem Experiment mit zwei Paaren von Helmholtzspulen auf einige Prozente genau kompensiert. Als Nullinstrument dient ein empfindlicher ballistischer Galvanometerverstärker.

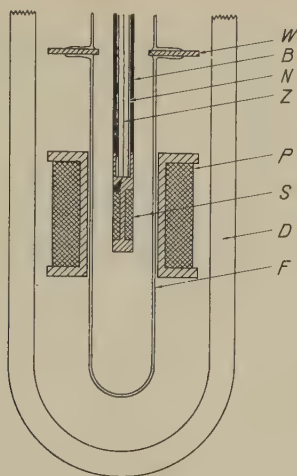


Fig. 2

Anordnung von Probe und Spulen im Kryostat

$D$  = Heliumdewar,  $F$  = Film auf Glasträger,  $P$  = Primärspule,  $S$  = Sekundärspule mit Zuleitungen  $Z$ ,  $N$  = Neusilberrohr,  $B$  = Bleiabschirmung,  $W$  = Wolframstifte

Die Metallfilme sind auf die Innenwand des Pyrexrohrs  $F$  aufgedampft. Sie besitzen einen Radius von ca. 1,2 cm und eine Länge von ca. 18 cm. Im oberen Teil des Filmträgers  $F$  sind 4 Wolframstifte je unter  $90^\circ$  versetzt eingeschmolzen, die im Innern des Rohrs platiniiert sind und als Sonden für die Widerstandsmessung an den Filmen dienen. In einigen Versuchen, bei denen nur das Widerstandsverhalten der Filme untersucht wurde, sind die Platinkontakte auch längs einer Mantellinie des Pyrexrohrs angebracht worden.

**4.3. Filmherstellung.** Die Filme wurden im Vakuum aufgedampft. Die Verdampfungsrate lag zwischen etwa  $10 \text{ \AA/Min.}$  und einigen Hundert  $\text{\AA/Min.}$  Der Druck beim Aufdampfen war nie grösser als  $p = 2 \cdot 10^{-6} \text{ mm Hg}$ , vor- und nachher etwa zehnmal kleiner.

Als Verdampfungsquelle wurde eine in der Achse des Filmträgers  $F$  zentrierte, ca. 16 cm lange Spirale aus Molybdändraht verwendet, der mit Molybdändraht von 0,05 mm Durchmesser umspinnen war. Mit dieser Anordnung lässt sich erreichen, dass das geschmolzene Zinn in Ritzen festsitzt und dadurch die Filmdicke konstant wird.

Das aufzudampfende Zinn wurde elektrolytisch in zylindersymmetrischer Anordnung auf die Molybdänspirale mit Reinzinn als Anode auf-

getragen. Eine Probe des Anodenblechs wurde chemisch analysiert. Dabei konnten kein Antimon und nur Spuren von Aluminium, Blei, Kupfer und Eisen festgestellt werden. Das elektrolytische Bad setzte sich nach PFANHAUSER 1941 aus 25 g/l NaOH, 10 g/l KCN und 25 g/l  $\text{SnCl}_2$  krist. zusammen. Alle verwendeten Chemikalien waren analysenrein. Wir möchten die chemischen Verunreinigungen in den Filmen als bedeutungslos ansehen neben den zahlreichen Gitterstörungen.

Der Filmträger *F* wurde während dem Aufdampfen mit flüssigem Stickstoff gekühlt. Die Erwärmung der Filme beim Aufdampfen lässt sich mit Hilfe der Matthiessenschen Regel (vgl. Abschnitt 5.1) abschätzen aus der Widerstandsänderung der Filme beim Abschalten des Heizstroms durch die Verdampfungsquelle. Sie wurde zu maximal 15° gefunden und war in den meisten Fällen kleiner.

Nach dem Aufdampfen wurden die Filme bei Zimmertemperatur getempert und hernach vom Vakuumsystem abgeschnitten. Der Luft-einlass verursachte keine Widerstandsänderung innerhalb der Messgenauigkeit von ca. 2%. In einem Fall wurde der Temperaturverlauf des elektrischen Widerstandes an einem Film überprüft, der zwei Wochen lang im Kryostat aufbewahrt lag, ohne dass eine Veränderung festgestellt werden konnte.

Eine starke Gasabsorption in den Filmen findet dagegen statt, wenn ins Vakuumsystem Luft eintritt, bevor die Filme getempert sind. Die Widerstandsänderung macht dann sofort ca. 10% aus und nachfolgendes Tempern reduziert den Restwiderstand der Filme nicht mehr wesentlich.

Die Bestimmung der Filmdicke wurde mit folgenden Methoden ausgeführt:

1. durch Eichen der Stromausbeute bei der Elektrolyse und quantitatives Abdampfen;
2. durch Wägen des Trägers mit und ohne Film;
3. durch Lösen des Films in Salzsäure und anschliessende potentiometrische Titration\*).

Wir halten die Unsicherheit in der Kenntnis der Schichtdicke für kleiner als  $\pm 10\%$ , wobei allerdings wie üblich die Dichte der Filme gleich derjenigen von massivem Zinn gesetzt wurde.

In unserer Anordnung musste kein Bestandteil der Aufdampfapparatur im Vakuum beweglich sein. Es war aber andererseits nicht möglich, die Verdampfungsquelle vor dem Aufdampfen intensiv zu entgasen. Mit dem Einsetzen der Filmkondensation war immer eine Verbesserung des Vakuums feststellbar. Dies ist wohl der Getterwirkung des Films zuzuschreiben und dürfte das zu starke Anwachsen des Restwiderstandes bei unseren dünnsten Filmen erklären (vgl. Tabelle 2 und NIEBUHR 1952).

\*) Wir danken Herrn Professor Dr. O. GÜBELI und Herrn dipl. ing. chem. H. GNEFF für die Ausführung von Analysen.



Tabelle 2  
Restwiderstandsverhältnis der Zinnfilme

$\delta$ in Å	$R(4,2^\circ \text{K})/R(295^\circ \text{K})$
260	0,23
445	—
470	0,23
890	0,13
960	0,11
1000	0,14
1420	0,10
1790	0,09 <sub>5</sub>
1880	0,06
1920	0,09
2340	0,09
2350	0,06 <sub>5</sub>

## 5. Resultate

5.1. *Widerstandsverhalten der Filme.* Das Widerstandsverhalten aufgedampfter Zinnfilme ist von BUCKEL und HILSCH 1952 sowie NIEBUHR 1952 ausführlich untersucht worden. Wir haben uns überzeugt, dass unsere Filme ebenfalls die folgenden Eigenschaften zeigen:

1. Die Temperaturabhängigkeit des elektrischen Widerstandes ist für Filme gleicher Dicke reproduzierbar.

2. Beim ersten Aufwärmen von Filmen, die durch abschreckende Kondensation entstanden sind, spielen sich irreversible Widerstandsänderungen ab, wobei auch negative Temperaturkoeffizienten auftreten. Diese Effekte hängen auf Grund von Röntgen- und Elektronenbeugungsaufnahmen (RUEHL 1954, BUCKEL 1954) mit dem Wachstum der Kristallite zusammen.

3. Das Widerstandsverhalten der Filme unterhalb der höchsten Temperatur, auf die der Film gebracht wurde, ist reversibel und die Mathiesensche Regel ist gültig.

Fig. 3 zeigt den mittleren Temperaturkoeffizienten

$$\alpha = \frac{1}{R(T)} \cdot \frac{R(T) - R(T')}{T - T'}$$

des spezifischen Widerstandes zwischen Zimmertemperatur  $T$  und dem Siedepunkt  $T'$  von flüssigem Stickstoff, bezogen auf Zimmertemperatur, in Abhängigkeit von der Schichtdicke  $\delta$ . Für kompaktes Zinn (gestrichelter Pfeil am rechten Figurenrand) ist  $\alpha = 4,0 \cdot 10^{-3}/\text{Grad}$ .

Diskutiert man diese Messungen mit der Annahme freier Leitungselektronen, so zeigen sie den Einfluss der Begrenzung der freien Weglänge durch die Filmdicke (FUCHS 1938, CHAMBERS 1950). Es gilt für  $l_\infty \ll \delta$

$$\alpha = \alpha_{\infty} [1 - 3(1 - p) l_{\infty} / 8 \delta], \quad (5.11)$$

wo  $\alpha_{\infty}$  den Temperaturkoeffizienten des spezifischen Widerstandes und  $l_{\infty}$  die mittlere freie Weglänge der Elektronen in sehr dicken Schichten

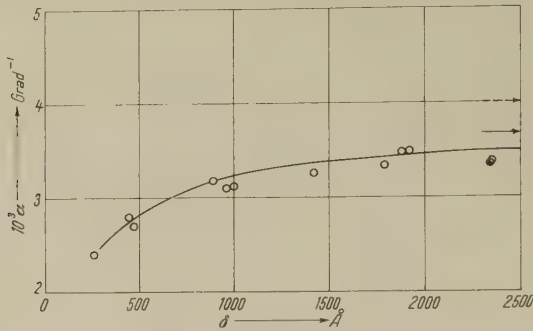


Fig. 3

Mittlerer Temperaturkoeffizient  $\alpha$  des elektrischen Widerstandes der Zinnfilme in Abhängigkeit von der Schichtdicke  $\delta$

—→ Grenzwert von  $\alpha$  für sehr dicke Filme —→  $\alpha$  für kompaktes Zinn  
 — mit  $p = 0,1$  angepasste Kurve nach der Theorie von FUCHS 1938

bedeuten, ferner  $p$  den Bruchteil der in der Oberfläche elastisch gestreuten Elektronen.

Berechnet man gleich wie NIEBUHR 1952 für kompaktes Metall das Verhältnis der Konzentration freier Elektronen  $n_F$  zur Konzentration der Atome  $n$  aus (FRÖHLICH 1936)

$$n_F/n = c T / \Theta^2 \varrho(T), \quad (5.12)$$

wo  $c = 2,5 \cdot 10^{-6} \Omega \cdot \text{m} \cdot \text{Grad}$ ,  $\Theta$  die Debyetemperatur und  $\varrho(T)$  den spezifischen Widerstand bei der Temperatur  $T \gg \Theta$  bedeuten, und hierauf die mittlere freie Weglänge  $l(T)$  aus (SONDHEIMER 1952)

$$l(T) \varrho(T) n_F^{2/3} = 1,27 \cdot 10^4 \Omega, \quad (5.13)$$

so wird für Zinn mit  $\Theta = 210^\circ \text{K}$  und  $\varrho(295^\circ \text{K}) = 10,1 \cdot 10^{-8} \Omega \cdot \text{m}$

$$n_F/n = 0,15 \quad \text{und} \quad l(295^\circ \text{K}) = 400 \text{ Å}.$$

Da unsere dicksten Filme ungefähr 8% Restwiderstand haben, ist dort etwa  $l_{\infty}(295^\circ \text{K}) = 370 \text{ Å}$  und  $\alpha_{\infty} = 3,7 \cdot 10^{-3} / \text{Grad}$  (ausgezogener Pfeil am rechten Rand von Fig. 3) zu setzen. Mit Verwendung dieser Daten lässt sich durch Anpassen der theoretischen Kurve nach Gl. (5.11) an die Messpunkte der Bruchteil der in der Filmoberfläche elastisch gestreuten Elektronen zu  $p \approx 0,1$  bestimmen.

Ferner schliesst man aus 8% Restwiderstand auf eine freie Weglänge  $l_{\infty}(4,2^\circ \text{K}) \approx 4650 \text{ Å}$  und mit Gl. (3.23) weiter auf eine Pippardsche Kohärenzlänge

$$\xi = 1630 \text{ Å}.$$



Tabelle 2 zeigt das gemessene Restwiderstandsverhältnis  
 $R(4,2^\circ\text{K})/R\ (295^\circ\text{K})$

in Abhängigkeit von der Filmdicke. Es stimmt innerhalb der Streuung für die dickeren Filme mit dem von BUCKEL und HILSCH 1952 sowie NIEBUHR 1952 angegebenen Restwiderstandsverhältnis überein, während sich bei unseren dünnsten Filmen der in Abschnitt 4.3 bereits erwähnte Gasgehalt im Metallgitter bemerkbar macht.

Durch Tempern oberhalb Zimmertemperatur kann das Restwiderstandsverhältnis der dickeren Filme bis auf etwa 1% herabgedrückt werden. Dabei scheinen sich jedoch mindestens an einzelnen Stellen in der Schicht Rissen zu bilden. Jedenfalls ist es vorgekommen, dass getemperte Filme, deren Widerstandsverhalten in Ordnung schien, bei der Eindringtiefenmessung starke nichtlineare Effekte zeigten in Magnetfeldern, die etwa zehnmal kleiner waren als die üblicherweise zulässigen (vgl. Abschnitt 5.2).

Tabelle 3  
Zahl freier Leitungselektronen pro Atom in Zinn

$n_F/n$	Literatur
0,43	ANDREW 1949
1,1	CHAMBERS 1952
0,35	KUNZLER und RENTON 1957
0,8	ALEXANDROV und VERKIN 1958

Die Zahl der freien Elektronen pro Atom kann experimentell aus Leitfähigkeitsmessungen bestimmt werden, sofern über  $p$  willkürlich verfügt wird. Meistens wird im Anschluss an CHAMBERS 1950 völlig diffuse Oberflächenstreuung angenommen. In Tabelle 3 sind einige Werte  $n_F/n$  zusammengestellt, die für  $p = 0$  an kompaktem Zinn gemessen wurden. Sie vermitteln einen Anhaltspunkt über die quantitative Unsicherheit, mit der die verwendete Leitfähigkeitstheorie behaftet ist. Unser Wert  $n_F/n = 0,1_5$  (für  $p = 0,1$ ), der für ein zweiwertiges Metall vernünftig erscheint, ist zwar deutlich kleiner als die tabellierten Werte, indessen werden die in Abschnitt 6 gezogenen Schlüsse dadurch nicht gefährdet.

5.2. Eindringtiefenmessung. Vor der Eindringtiefenmessung wurde mit normalleitendem Film die in der Sekundärspule  $S$  induzierte Spannung  $V_n$  definiert um den Faktor  $v$  abgeschwächt und kompensiert. Der hierzu benötigte Kapazitätswert der Dekade  $C$  sei  $C_n$ . Anschliessend wurde die Temperatur erniedrigt und mit supraleitendem Film wieder die in  $S$  induzierte Spannung  $V_s$  durch Aufsuchen der passenden Kapazität  $C_s$  kompensiert. Es gilt dann

$$v \cdot C_n/C_s = V_n/V_s = H_a/H_i, \tag{5.21}$$

wobei sich  $V_n$  und  $V_s$  resp.  $H_a$  und  $H_i$  auf denselben felderzeugenden Strom beziehen. Hierauf lässt sich die Londonsche Eindringtiefe aus den Gl. (5.21) und (3.15) berechnen.

Die kritische Temperatur der Filme wurde aus dem Widerstandsverlauf bestimmt. Sie lag immer etwa  $1/10^\circ$  höher als bei kompaktem Zinn, die Umwandlungsbreite war ungefähr  $1/100^\circ$ . Ein ähnliches Widerstandsverhalten haben ZAVARITSKII 1951 wie auch BUCKEL und HILSCH 1952 festgestellt.

LOCK 1951 hat gezeigt, dass Sprungpunktsverschiebungen der Grössenordnung  $1/10^\circ$  durch Spannungen zwischen Film und Unterlage bewirkt werden können und keinen wesentlichen Einfluss auf die Eindringtiefe haben.

Das kritische Feld war in keinem Fall grösser als einige Prozente des kritischen Feldes kompakter Körper. Hierfür sind nach unseren Erfahrungen nicht Randeffekte an den Enden des Films verantwortlich, sondern Löcher im Film. Die gleiche Feststellung macht auch SCHAWLOW 1958.

$C_s$  wurde zuerst immer mit möglichst kleinem Strom  $I_P$  durch die Primärspule  $P$  eingestellt, dann wurde der felderzeugende Strom allmählich gesteigert. Es zeigte sich, dass ein Bereich von Primärfeldern existiert, in dem eindeutig  $C_s$  von  $I_P$  unabhängig ist. Bei den ersten Anzeichen von Nichtlinearität zwischen  $I_P$  und  $V_s$  wurde der felderzeugende Strom wieder reduziert und der zur Kompensation benötigte Kapazitätswert  $C_s$  überprüft. In vielen Fällen reproduzierte sich der lineare Teil wieder, manchmal wurde jedoch  $C_s$  grösser. In diesen Fällen wurde der Film auf  $4,2^\circ\text{K}$  aufgewärmt und erneut abgekühlt, wobei sich der ursprünglich gemessene Wert  $C_s$  immer reproduzierte. Die kleinsten verwendeten Primärfelder betrugen etwa  $1/100$  Oersted, die grössten etwa 5 Oersted.

$C_s$  konnte auf wenige Prozente genau eingestellt werden. In Fig. 4 ist eine typische Messkurve dargestellt.

*5.21. Temperaturabhängigkeit der Eindringtiefe.* Fig. 5 zeigt die Temperaturabhängigkeit der Eindringtiefe von Zinn für verschiedene Filmdicken. Es werden reduzierte Einheiten verwendet, die Gl. (2.1) in eine Gerade durch die Punkte (1,0) und (0,1) des Koordinatensystems transformieren. Die Messpunkte zeigen für die verschiedenen Filmdicken deutliche Abweichungen von dieser Geraden.

Systematische Messfehler möchten wir für unwahrscheinlich halten, da störende magnetische Einstreuung mit Sicherheit vermieden werden konnte und geringfügige Veränderungen in der Geometrie der Anordnung, wie sie durch das Abkühlen des Kryostaten oder durch das Abpumpen des Heliums über dem Temperaturbad bewirkt werden können, belanglos sind.



Die grösste Unsicherheit bei der Auswertung der Messungen nach Gl. (3.15) rührt von der Bestimmung der Schichtdicke her. Sie ist mit  $\pm 10\%$  jedoch sicher zu klein, um die gemessenen Abweichungen von Gl. (2.1) fragwürdig erscheinen zu lassen.

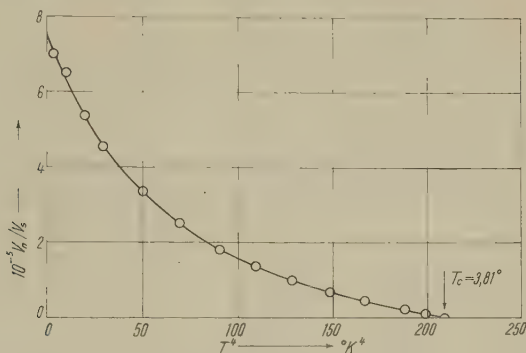


Fig. 4

Temperaturabhängigkeit der Feldabschwächung  $V_n/V_s = H_a/H_i$   
für einen Zinnfilm der Dicke  $\delta = 1880 \text{ \AA}$

Wesentlich scheint uns, dass unsere Messungen das Temperaturgebiet zwischen  $1,35^\circ \text{K}$  (der tiefsten durch Abpumpen erreichten Temperatur) und der kritischen Temperatur erfassen. Es wird dadurch ein strengerer

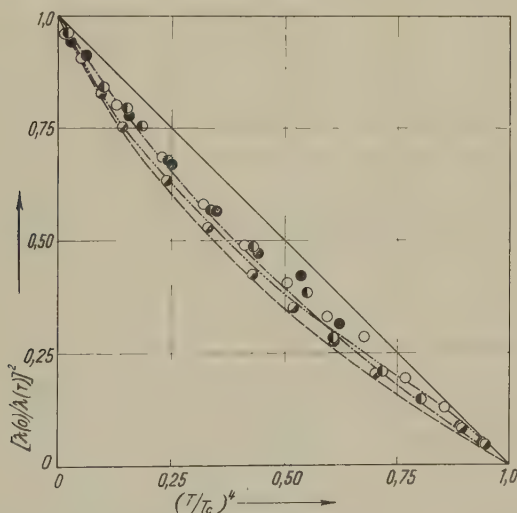


Fig. 5

Temperaturabhängigkeit der Eindringtiefe von Zinn für verschiedene Filmdicken ( $\bullet = 447 \text{ \AA}$ ,  $\bullet = 995 \text{ \AA}$ ,  $\circ = 1420 \text{ \AA}$ ,  $\bullet = 1880 \text{ \AA}$ ) und theoretische Kurven nach GORTER und CASIMIR 1934 (—), LEWIS 1956 für  $\alpha = 1,25$  (---),  $\alpha = 1,50$  (-.-) und BARDEEN, COOPER und SCHRIEFFER 1957 (....)

Test auf die Gültigkeit der Gl. (2.1) ermöglicht als in verschiedenen älteren Arbeiten. Die Tagungsberichte von SHOENBERG 1949 und PIP-PARD 1958 sind in diesem Zusammenhang von Interesse.

Die Übereinstimmung unserer Resultate mit denjenigen von SCHAWLOW und DEVLIN 1959 ist befriedigend.

Die Ausdehnung der Eindringtiefmessungen nach noch tieferen Temperaturen ist heute mit Verwendung von  $\text{He}^3$  möglich und scheint uns interessant zu sein.

5.22. *Absolute Werte der Eindringtiefe.* In Fig. 6 sind die auf  $T = 0^\circ \text{K}$  extrapolierten Londonschen Eindringtiefen dargestellt, die für verschiedene Schichtdicken  $\delta$  gefunden wurden. Es ist eine Zunahme der Ein-

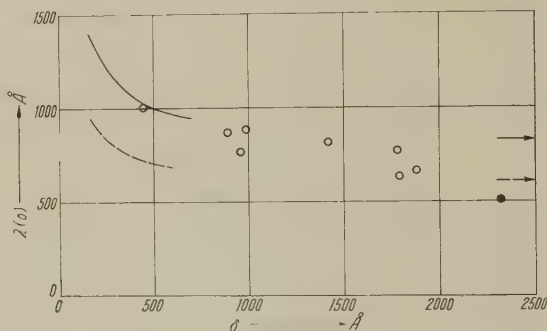


Fig. 6

Absolutwerte  $\lambda(0)$  der Eindringtiefe von Zinn in Abhängigkeit von der Filmdicke  $\delta$ .  $\circ$  = eigene Messungen,  $\bullet$  nach LOCK 1951. Theoretische Kurven nach PIP-PARD 1953 und PETER 1958 mit  $\xi_0 = 2500 \text{ \AA}$ ,  $\xi = 1630 \text{ \AA}$  und  $A = 3,27 \cdot 10^{-21} \text{ V.s.m.}\text{\AA}^{-1}$  (—) resp.  $A = 1,54 \cdot 10^{-21} \text{ V.s.m.}\text{\AA}^{-1}$  (---)

dringtiefe mit abnehmender Filmdicke feststellbar. Der Absolutwert für die dicksten Filme beträgt  $\lambda(0) = 700 \pm 100 \text{ \AA}$  und ist damit grösser als der von LOCK 1951 an dickeren Filmen gefundene  $\lambda(0) = 500 \pm 10 \text{ \AA}$ . Der Unterschied würde noch vergrössert, wenn wir unsere Messungen in gleicher Weise wie LOCK 1951 von  $T \approx 3^\circ \text{K}$  aus mit Verwendung von Gl. (2.1) auf den absoluten Nullpunkt extrapolieren würden. Mit den Angaben von SCHAWLOW 1958 besteht Übereinstimmung.

Man könnte vermuten, dass die Oberflächenrauigkeit unserer Filme für Transmissionsmessungen zu gross war und deshalb die Eindringtiefe überschätzt wurde. In Vorversuchen mit Zinnfilmen, die bei Zimmertemperatur und mit einer Verdampfungsrate von nur einigen  $\text{\AA}/\text{sec}$  in einer Balzers-Anlage aufgedampft wurden, hat sich gezeigt, dass eine messbare Abschwächung des Magnetfeldes in solchen grobkristallinen Filmen erst von einer kritischen Dicke  $\delta \approx 400 \text{ \AA}$  an auftritt, sodass mit einer Oberflächenrauigkeit von mindestens  $\pm 200 \text{ \AA}$  gerechnet werden muss. LOCK 1951 schätzt die Rauigkeit seiner bei Zimmertemperatur



aufgedampften Zinnfilme aus elektronenmikroskopischen Aufnahmen übereinstimmend auf ca.  $\pm 250 \text{ \AA}$ . An einem grobkristallinen Film der Dicke  $\delta = 1930 \text{ \AA}$  (bestimmt mit der Annahme homogener Massenbelegung und Verwendung der Dichte von kompaktem Zinn) haben wir jedoch dieselbe Eindringtiefe  $\lambda(0) = 735 \text{ \AA}$  gemessen wie an ungefähr gleich dicken Filmen, die bei  $90^\circ \text{ K}$  aufgedampft wurden und deren Oberflächenrauigkeit erheblich kleiner war (Anhaltspunkte ergeben sich aus den Angaben von NIEBUHR 1952 über die kritische Schichtdicke von Zinnfilmen, die auf gekühlte Träger aufgedampft wurden). An dünneren grobkristallinen Filmen wurden allerdings immer grössere Eindringtiefen gemessen als an feinkristallinen, z. B.  $\lambda(0) = 1000 \text{ \AA}$  für  $\delta = 1500 \text{ \AA}$  und  $\lambda(0) = 1950 \text{ \AA}$  für  $\delta = 1160 \text{ \AA}$ .

Man könnte auch vermuten, dass Löcher im Film als Stellen vollkommener Transparenz für eine Überschätzung der Eindringtiefe verantwortlich sind. Nimmt man in roher Abschätzung an, dass von solchen Stellen her ein temperaturunabhängiges Magnetfeld  $H_i$  ins Innere des Hohlkörpers eindringt, so wäre es aber neben dem Anteil  $H_i$  nach Gl. (3.15) so beträchtlich, dass die experimentell gefundene Temperaturabhängigkeit von  $(H_i + H_e)$  unverständlich wäre.

## 6. Diskussion

Die Temperaturabhängigkeit der Eindringtiefe lässt sich auf einfachste Weise herleiten aus dem Zwei-Fluida-Modell von GORTER und CASIMIR 1934 mit Gl. (1.2) als Verknüpfung zwischen der Konzentration supraleitender Elektronen und der Eindringtiefe. In diesem Modell ist die freie Energie des Supraleiters so angepasst, dass die spezifische Elektronenwärme proportional zu  $T^3$  wird; als thermodynamische Konsequenz hängt das kritische Feld quadratisch von der Temperatur ab.

Neuere Messungen an supraleitendem Zinn (CORAK und SATTERTHWAITE 1956, GOODMAN 1957, ZAVARITSKII 1957) legen für die spezifische Elektronenwärme eine Temperaturabhängigkeit nahe von der Form

$$c_{es} = A(T) \exp(-\alpha T_c/T) \quad (6.1)$$

mit einer Energielücke  $\Delta E \approx \alpha kT_c$  in einem Einelektronen-Energiespektrum, wo  $\alpha$  von der Grössenordnung Eins ist. Entsprechende Abweichungen im Temperaturverlauf des kritischen Feldes sind von LOCK, PIPPARD und SHOENBERG 1951, SERIN, REYNOLDS und LOHMANN 1952 sowie MAXWELL und LUTES 1954 gefunden worden.

LEWIS 1956 hat das Zwei-Fluida-Modell von GORTER und CASIMIR 1934 verallgemeinert, indem er den Ausdruck für die freie Energie des Supraleiters an eine exponentielle Temperaturabhängigkeit der spezifischen Elektronenwärme anpasst (temperaturunabhängige Energielücke). Als Konsequenz findet er mit Verwendung von Gl. (1.2) eine Temperatur-

abhängigkeit der Eindringtiefe, die für  $\alpha = 1,25$  und  $\alpha = 1,50$  in Fig. 5 dargestellt ist. Die Theorie von BARDEEN, COOPER und SCHRIEFFER 1957 sagt eine ähnliche Temperaturabhängigkeit voraus, die in Fig. 5 ebenfalls eingezeichnet ist.

Erst nach Abschluss dieser Arbeit haben wir von den Berechnungen von MILLER 1959 Kenntnis erhalten, in denen die Temperaturabhängigkeit der Eindringtiefe von Zinn für verschiedene Werte des Verhältnisses von Kohärenzlänge zu mittlerer freier Weglänge aus der Beziehung zwischen Stromdichte und Vektorpotential nach MATTIS und BARDEEN 1958 explizit berechnet wird. MILLER findet für alle Werte der mittleren freien Weglänge ein ähnliches Temperaturverhalten der Eindringtiefe.

Experimentelle Evidenz für eine Energielücke aus Eindringtiefenmessungen ist erstmals von SCHAWLOW und DEVLIN 1959 an massivem Zinn gefunden worden. Auch unsere Messungen an Filmen lassen sich nach LEWIS 1956 bzw. BARDEEN, COOPER und SCHRIEFFER 1957 interpretieren. In Fig. 5 fällt auf, dass sich die Breite der Energielücke nur schwach auf die Temperaturabhängigkeit der Eindringtiefe auswirkt. Für andere Evidenzen an Zinn sei auf die zusammenfassende Arbeit von BIONDI, FORRESTER, GARFUNKEL und SATTERTHWAITE 1958 sowie auf die neueren Ultrarot-Experimente von RICHARDS und TINKHAM 1958 hingewiesen.

In Fig. 6 sind die effektiven Londonschen Eindringtiefen am absoluten Nullpunkt in Abhängigkeit von der Schichtdicke  $\delta$  eingezeichnet, die aus den Gl. (3.15) und (3.22) mit  $\xi_0 = 2500 \text{ \AA}$  (siehe Abschnitt 3.2),  $\xi = 1630 \text{ \AA}$  (siehe Abschnitt 5.1) und den Werten  $\lambda = 3,27 \cdot 10^{-21} \text{ V.s.m.A}^{-1}$  (LAURMANN und SHOENBERG 1949, LOCK 1951) resp.  $\lambda = 1,54 \cdot 10^{-21} \text{ V.s.m.A}^{-1}$  (FABER und PIPARD 1955) für die Supraleitungskonstante berechnet wurden. Die Pfeile am rechten Figurenrand entsprechen den Eindringtiefen, die sich nach PIPARD 1953 für den supraleitenden Halbraum mit diffuser Oberflächenstreuung ergeben.

Der von FABER und PIPARD 1955 angegebene Wert für die Supraleitungskonstante ist von BARDEEN, COOPER und SCHRIEFFER 1957 verwendet worden und gibt für kompaktes Zinn am absoluten Nullpunkt eine Eindringtiefe  $\lambda(0) = 575 \text{ \AA}$ .

Unsere Messungen sind mit der nichtlokalen Theorie verträglich, wenn man die Unsicherheit, die mit der Bestimmung der Kohärenzlänge  $\xi$  nach Abschnitt 5.1 verbunden ist, berücksichtigt. Die von uns gefundene Abhängigkeit der Eindringtiefe von der Filmdicke hat wegen dem in Abschnitt 5.1 Erwähnten qualitative Bedeutung. Man kann den Messungen aber doch entnehmen, dass die Eindringkurve keine einfache Exponentialfunktion ist. LEWIS 1958 hat einen Versuch unternommen, die Eindringkurve mit Richtungskorrelationsexperimenten auszumessen; quantitative Aussagen sind jedoch bis jetzt nicht möglich geworden.

Die stärkste Stütze für die nichtlokale Theorie bedeutet wohl die nicht-tensorielle Anisotropie der Eindringtiefe, die von PIPPARD 1950 an Zinn gefunden wurde. Zur Interpretation dieser Experimente sind aber Zweifel geäußert worden (KHAIKIN 1955, PIPPARD in BARDEEN 1956). SCHAWLOW und DEVLIN 1959 a bestätigen in ihren kürzlich ausgeführten Anisotropiemessungen an Zinnplatten die Pippardsche Interpretation.

Eine Verbesserung der von uns verwendeten Vakuumtechnik ist ohne allzu grosse Schwierigkeiten möglich, ebenso kann das Abschneiden der Filme vom Vakuumsystem vor der Eindringtiefenmessung vermieden werden. Es ergibt sich dann die Möglichkeit, entsprechende Messungen an dünneren Filmen auszuführen und damit die Form der Eindringkurve besser zu prüfen. Ebenfalls lohnend scheint uns die Ausdehnung solcher Messungen nach noch kleineren reduzierten Temperaturen  $T/T_c$ .

Eindringtiefenmessungen an Blei sind in Vorbereitung. Blei erscheint uns besonders interessant, weil es die grössten Abweichungen vom Gesetz der korrespondierenden Zustände zeigt. DECKER, MAPOTHER und SHAW 1958 schliessen aus der von ihnen gemessenen Temperaturabhängigkeit des kritischen Feldes, dass die spezifische Elektronenwärme eher proportional zu  $T^4$  ist als proportional zu  $\exp(-\alpha T_c/T)$ . Weil die Zerlegung der spezifischen Wärme in die Anteile des Gitters und der Elektronen bei Blei besonders schwierig ist, könnte zusätzliche Information aus Eindringtiefenmessungen nützlich sein.

Unserem verehrten Lehrer, Herrn Prof. Dr. G. BUSCH, danken wir für das fördernde Interesse und die Unterstützung bei dieser Arbeit herzlich, ebenso Herrn Dr. A. L. SCHAWLOW für private Mitteilungen und die Einsicht in unveröffentlichte Resultate. Dem Schweizerischen Nationalfonds zur Förderung der wissenschaftlichen Forschung sind wir für finanzielle Unterstützung zu Dank verpflichtet.

#### Literaturverzeichnis

- B. N. ALEXANDROV und B. I. VERKIN, Zh. eksper. teor. Fiz. 34, 1655 (1958), übersetzt in Soviet Physics JETP 7, 1137 (1958).  
 E. R. ANDREW, Proc. Phys. Soc. A 62, 77 (1949).  
 J. BARDEEN, Handbuch der Physik 15, Springer Verlag, Berlin (1956), p. 284.  
 J. BARDEEN, L. N. COOPER und J. R. SCHRIEFFER, Phys. Rev. 108, 1175 (1957); siehe auch J. BARDEEN, Physica 24 S, 27 (1958).  
 M. A. BIONDI, A. T. FORRESTER, M. P. GARFUNKEL und C. B. SATTERTHWAIT, Rev. Mod. Phys. 30, 1109 (1958).  
 W. BUCKEL, Z. Physik 138, 136 (1954).  
 W. BUCKEL und R. HILSCH, Z. Physik 131, 420 (1952).  
 G. BUSCH, Helv. Phys. Acta 27, 204 (1954).  
 R. G. CHAMBERS, Nature 165, 239 (1950).  
 R. G. CHAMBERS, Proc. Roy. Soc. A 202, 378 (1950).  
 R. G. CHAMBERS, Proc. Roy. Soc. A 215, 481 (1952).  
 R. G. CHAMBERS, Proc. Cambr. Phil. Soc. 52, 363 (1956).  
 W. S. CORAK und C. B. SATTERTHWAIT, Phys. Rev. 102, 662 (1956).



- D. L. DECKER, D. E. MAPOTHER und R. W. SHAW, *Phys. Rev.* **112**, 1888 (1958).  
M. DESIRANT und D. SHOENBERG, *Proc. Phys. Soc.* **60**, 413 (1948).  
R. DOLL, *Z. Physik* **153**, 207 (1958).  
E. ERLBACH, R. L. GARWIN und M. P. SARACHIK, *Bull. Am. Phys. Soc. Ser. II*, **3**, 133 (1958).  
T. E. FABER und A. B. PIPPARD, *Proc. Roy. Soc. A* **231**, 336 (1955).  
H. FRÖHLICH, *Elektronentheorie der Metalle*, Springer Verlag, Berlin 1936, p. 189.  
K. FUCHS, *Proc. Cambr. Phil. Soc.* **34**, 100 (1938).  
R. E. GLOVER und M. TINKHAM, *Phys. Rev.* **108**, 243 (1957).  
B. B. GOODMAN, *C. R. Acad. Sci. (Paris)* **244**, 2899 (1957).  
C. J. GORTER, H. B. G. CASIMIR, *Phys. Z.* **35**, 963 (1934) und *Z. techn. Phys.* **15**, 539 (1934); siehe D. SHOENBERG, *Superconductivity*, Cambridge University Press (1952), p. 179.  
R. A. HEIN und M. C. STEELE, *Phys. Rev.* **105**, 877 (1957).  
R. JAGGI und R. SOMMERHALDER, *Helv. Phys. Acta* **31**, 292 (1958).  
R. JAGGI und R. SOMMERHALDER, *Helv. Phys. Acta* **32**, 313 (1959).  
M. S. KHAIKIN, *Zh. eksper. teor. Fiz.* **28**, 115 (1955), übersetzt in *Soviet Physics JETP* **1**, 164 (1955).  
M. S. KHAIKIN, *Zh. eksper. teor. Fiz.* **34**, 1389 (1958).  
J. S. KHUKHOREVA, *Zh. eksper. teor. Fiz.* **33**, 301 (1957), übersetzt in *Soviet Physics JETP* **6**, 234 (1958).  
J. E. KUNZLER und C. A. RENTON, *Phys. Rev.* **108**, 1397 (1957).  
E. LAURMANN und D. SHOENBERG, *Proc. Roy. Soc. A* **198**, 560 (1949).  
H. W. LEWIS, *Phys. Rev.* **102**, 1508 (1956).  
H. R. LEWIS, *Diss. Univ. Illinois* (1958).  
J. M. LOCK, *Proc. Roy. Soc. A* **208**, 391 (1951).  
J. M. LOCK, A. B. PIPPARD und D. SHOENBERG, *Proc. Cambr. Phil. Soc.* **47**, 811 (1951).  
F. und H. LONDON, *Proc. Roy. Soc. A* **149**, 71 (1935) und *Physica* **2**, 341 (1935); siehe F. LONDON, *Superfluids I*, John Wiley & Sons New York (1950).  
O. S. LUTES, *Phys. Rev.* **105**, 1451 (1957).  
D. C. MATTIS und J. BARDEEN, *Phys. Rev.* **111**, 412 (1958).  
E. MAXWELL und O. S. LUTES, *Phys. Rev.* **95**, 333 (1954).  
W. MEISSNER und R. OCHSENFELD, *Naturwiss.* **21**, 787 (1933).  
P. B. MILLER, *Phys. Rev.* **113**, 1209 (1959).  
J. NIEBUHR, *Z. Physik* **132**, 468 (1952).  
M. PETER, *Phys. Rev.* **109**, 1857 (1958).  
W. PFANHAUSER, *Galvanotechnik*, Akad. Verlags-Ges. Leipzig (1941), p. 763.  
A. B. PIPPARD, *Proc. Roy. Soc. A* **191**, 370, 385, 399 (1947).  
A. B. PIPPARD, *Proc. Roy. Soc. A* **203**, 98 (1950).  
A. B. PIPPARD, *Proc. Roy. Soc. A* **216**, 547 (1953).  
A. B. PIPPARD, *Physica* **24 S**, 48 (1958).  
P. L. RICHARDS und M. TINKHAM, *Phys. Rev. Letters* **1**, 318 (1958).  
W. RUEHL, *Z. Physik* **138**, 121 (1954).  
A. L. SCHAWLOW, *Phys. Rev.* **109**, 1856 (1958).  
A. L. SCHAWLOW und G. E. DEVLIN, *Phys. Rev.* **113**, 120 (1959).  
A. L. SCHAWLOW und G. E. DEVLIN, *Bull. Am. Phys. Soc. Ser. II*, **4**, 224 (1959 a).  
B. SERIN, C. A. REYNOLDS und C. LOHMANN, *Phys. Rev.* **86**, 162 (1952).  
Yu. V. SHARVIN, *Zh. eksper. teor. Fiz.* **22**, 367 (1952).  
D. SHOENBERG, *Proc. Roy. Soc. A* **175**, 49 (1940).  
D. SHOENBERG, *Physica* **15**, 71 (1949).  
D. SHOENBERG, *Superconductivity*, Cambridge University Press (1952), p. 138.  
D. SHOENBERG, *Nuovo Cimento* **10** (Suppl.), 459 (1953).  
E. H. SONDHEIMER, *Adv. in Phys.* **1**, 1 (1952).  
C. S. WHITEHEAD, *Proc. Roy. Soc. A* **238**, 175 (1957).  
N. V. ZAVARITSKII, *Dokl. Akad. Nauk. SSSR* **78**, 665 (1951).  
N. V. ZAVARITSKII, *Dokl. Akad. Nauk. SSSR* **85**, 749 (1952).  
N. V. ZAVARITSKII, *Zh. eksper. teor. Fiz.* **33**, 1085 (1957), übersetzt in *Soviet Physics JETP* **6**, 837 (1958).

# The Mechanism of the Reversal of the Spontaneous Polarization in $\text{LiH}_3(\text{SeO}_3)_2$ Single Crystals

by E. Fatuzzo

Laboratories RCA Limited, Zurich, Switzerland

(15. VIII. 1959)

*Abstract.* The reversal of the spontaneous polarization in  $\text{LiH}_3(\text{SeO}_3)_2$  crystals has been studied as a function of applied electric field. Except for very low fields the switching time  $t_s$  follows a power law of the form:  $t_s = kE^{-5/2}$ . Thermal and electrical treatment of the sample showed that up to fields of 50 KV/cm the switching time is controlled primarily by the nucleation of new domains. It thus appears that the  $5/2$  power law is determined by the nucleation rather than by the domain wall motion. The interaction between domains and nuclei in  $\text{LiH}_3(\text{SeO}_3)_2$  was found to be very high. It is proposed that all ferroelectrics with a high spontaneous polarization like  $\text{BaTiO}_3$  and  $\text{LiH}_3(\text{SeO}_3)_2$  tend to show a strong domain-nucleus interaction.

## 1. Introduction

$\text{LiH}_3(\text{SeO}_3)_2$  is a new ferroelectric material described by PEPINSKY and VEDAM<sup>1</sup>). They report a large spontaneous polarization at room temperature of  $15.0 \mu\text{coul}/\text{cm}^2$  and a 60 cycle coercive field of 1.4 KV/cm. No Curie point can be observed; the material decomposes at around  $100^\circ\text{C}$ . Due to the fact that this material is ferroelectric at room temperature and that the spontaneous polarization is very high it is interesting to study its switching properties.

In ferroelectrics the reversal of the spontaneous electrical polarization occurs through two mechanisms<sup>2</sup>): first the nucleation of new domains and second the growth of these domains through the sample by domain wall motion. Based on these two mechanisms, a model has been developed by FATUZZO and MERZ<sup>3</sup>) which explains the experimental results in Tri-Glycine Sulfate and also in  $\text{BaTiO}_3$ . This model will now be applied to  $\text{LiH}_3(\text{SeO}_3)_2$ .

In  $\text{BaTiO}_3$  the nucleation was found to be the slower of the two mechanisms<sup>4</sup>) up to fields of 50 KV/cm. and thus it governs the switching time. In Tri-Glycine Sulfate<sup>3</sup>), on the other hand, the switching was found to be determined by a nucleation process only in the low field region but by domain wall motion in the high field region.

We have investigated and reported about the domain-nucleus interaction in different materials<sup>3</sup>) and found that those materials which have

a high polarization tend to show a high interaction. We therefore expect  $\text{LiH}_3(\text{SeO}_3)_2$  (which has a high spontaneous polarization) to have a strong domain-nucleus interaction.

## 2. Preparation of the Samples

The crystals are grown from aqueous solution by the standard method and large crystals can be obtained. The material has a very pronounced cleavage plane parallel to the ferroelectric direction, so that the cutting and handling of the samples is rather delicate, as they can easily be broken along the cleavage direction. It is therefore very difficult to obtain samples thinner than about 0.1 mm. We have prepared all our samples by cutting the crystals by means of a wet thread, and then by carefully grinding them with abrasive powder and alcohol.

As electrodes we have used silver paste or evaporated gold; no noticeable difference between the two has been found. The electrode area must be kept relatively small, so as not to draw too much current from the pulse generator when high voltages are applied. On the other hand, if the electrodes are too small, a strong Barkhausen noise is observed, which does not permit measurements at very low fields. We have obtained the best result by using crystals with an electrode area of about 1 mm<sup>2</sup>.

## 3. Experimental Results

### 3.1. Switching time

The switching time  $t_s$  of  $\text{LiH}_3(\text{SeO}_3)_2$  depends considerably on the thickness of the sample. For thin samples ( $\sim 0.1$  mm)  $t_s$  is nearly as fast as in Tri-Glycine Sulfate, but for thicker samples it is slower than in that material. In Fig. 1 we have plotted the switching current  $i_s$  versus applied field  $E$ . Except for extremely low fields, where some deviation occurs, both the switching current and the switching time follow a law of the form:

$$i_s = kE^n \qquad t_s = KE^{-n}$$

where  $K = 2.6 \times 10^4$  and  $k = 3.9 \times 10^{-3}$  if  $i_s$  is measured in mA,  $t_s$  in  $\mu\text{sec}$  and  $E$  in KV/cm. Furthermore  $n \cong 5/2$ .

### 3.2. Shape of the Switching Pulse

The switching pulse was studied as a function of applied field. We found no change in the shape of the pulse from low to high applied fields; the pulse is for all fields almost symmetrical. The 'symmetry'<sup>3)</sup> which is defined as the ratio of 'rise time' to 'decay time' of the switching pulse is very close to 1 over the whole range of applied fields. Even for very low fields, where a rather strong Barkhausen noise is observed, the shape of the switching pulse remains the same.



There seems to be some indication of a slight dependence of the symmetry of the pulse on crystal thickness; thin samples give switching pulses with a slight asymmetry.

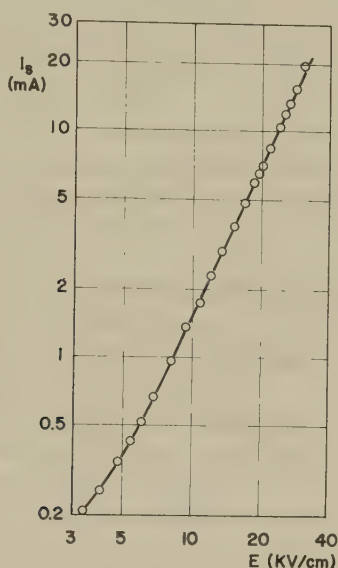


Fig. 1. Switching current versus applied field.  
The electrode area is  $6 \times 10^{-3} \text{ cm}^2$ .

### 3.3. Thermal and Electrical Treatment

We tried to determine whether the switching pulse is controlled by domain wall motion or by nucleation. This was done by using the techniques of surface-heating and switching in parts as described for Tri-Glycine Sulfate in a previous publication<sup>3</sup>). The three following facts indicate that *the nucleation* is the slower process in  $\text{LiH}_3(\text{SeO}_3)_2$  and thus determines primarily the switching time and the shape of the switching pulse.

(a) A small heater is placed in front of one electrode and then removed after a very short time. During the heating period, the switching time  $t_s$  decreases by a factor of 5 to 6 in just a few seconds. Upon removal of the heater,  $t_s$  returns to almost the original value in a few seconds. During the warming and cooling of the surface the pulse keeps its symmetry unchanged.

(b) By applying to the sample 4 or 5 pulses which are shorter than the switching time  $t_s$ , we are able to reverse the polarization in steps whereby the shape of the small individual current pulses fit together and add up

to the complete switching pulse which is obtained when only one long voltage pulse is applied.

(c) By applying pulses having a duration shorter than a certain critical time  $t^*$ , the polarization does not reverse, even if very many of them with the same polarity are applied. In  $\text{LiH}_3(\text{SeO}_3)_2$  the critical time  $t^*$  is much shorter than the switching time  $t_s$ .

#### 4. Discussion

The  $5/2$  power law for the switching time in  $\text{LiH}_3(\text{SeO}_3)_2$  up to very high fields is a very interesting result, as it might be related to the  $3/2$  power law found by G. J. GOLDSMITH<sup>5)</sup> in Thiourea and by H. L. STADLER<sup>6)</sup> in  $\text{BaTiO}_3$  at extremely high fields. In Tri Glycine Sulfate we found<sup>3)</sup> that at low fields  $t_s$  follows an exponential law and at high fields a linear law. It is difficult to see how a  $5/2$  (or  $3/2$ ) power law can fit into the model developed for Tri Glycine Sulfate. However, we first have to know whether nucleation or domain wall motion is the dominating factor.

Since the shape of the switching pulse does not depend on applied field it follows<sup>3)</sup> that only one of the two mechanisms controls the switching time. Furthermore, the three experimental facts described in section 3.3 indicate that the dominating mechanism should be nucleation for the following reasons:

(a) The response of the switching pulse to the heating of the surface is very prompt. In this short time the heating can affect only the surface of the sample hence only the rate of nucleation<sup>3)</sup> and not the wall motion in the interior. This result is different from that obtained on GASH<sup>7)</sup>. There, 5 min are necessary to change the switching time by only 20% by heating of the surface. The switching time is in that case primarily determined by the wall velocity inside the sample.

(b) In  $\text{LiH}_3(\text{SeO}_3)_2$  it is possible to reverse the polarization in steps by applying many short pulses, which is a further confirmation<sup>3)</sup> that in the whole range of fields used the nucleation time is larger than the domain wall motion time, otherwise the growing domains would collapse back every time the field is removed and no switching would be possible.

(c) The fact that the critical time  $t^*$  is much shorter than  $t_s$  is another argument that in  $\text{LiH}_3(\text{SeO}_3)_2$  the switching is governed primarily by the nucleation, because in this case the critical time  $t^*$  is given by the domain wall motion time<sup>3)</sup>.

#### 5. Conclusions

We have shown that in  $\text{LiH}_3(\text{SeO}_3)_2$  over the whole range of fields the nucleation seems to be slower than the domain wall motion and thus controls the switching time. From this follows that the nucleation, and not the domain wall motion is responsible for the  $5/2$  power law of the

switching time. It is a rather remarkable result that the nucleation time does not depend exponentially on the applied field but follows a power law. On the other hand, it appears that the  $3/2$  power law observed by GOLDSMITH<sup>5)</sup> in Thiourea and by STADLER<sup>6)</sup> in  $\text{BaTiO}_3$  might be due to the same mechanism. In Tri Glycine Sulfate too, the nucleation time does not follow the exponential law up to very high fields<sup>3)</sup>.

The interaction between domains and nuclei can be determined from the 'symmetry' of the switching pulse<sup>3)</sup> which in  $\text{LiH}_3(\text{SeO}_3)_2$  is almost 1. Thus the interaction is very strong, almost as strong as in  $\text{BaTiO}_3$ . There seems to be some indication, however, of a slight decrease of the interaction with decreasing thickness of the sample.

Based on the experimental facts, we propose that in every ferroelectric material the field dependence of the switching current and switching time can be described in the following way. There is a low field region I in which the switching time is controlled by the nucleation time and a high field region II in which the switching time is controlled by the domain wall motion time. Furthermore, the 'nucleation region I' itself can consist of two parts, a very low field region IA in which the nucleation time follows the usual exponential law  $t_n = t_0 e^{+\alpha/E}$  and a medium field region IB in which it follows a power law  $t_n = kE^{-n}$ .

Following this proposal, we conclude that in  $\text{BaTiO}_3$  it has not been possible to reach region II in which one would expect to find a linear dependence of  $1/t_d$  on  $E$ . In this material only region IA and IB are observed that is to say an exponential and a power law behavior both of which are controlled by the nucleation of domains; in  $\text{BaTiO}_3$  one never reaches the 'domain wall motion region II'. On the other hand, Tri Glycine Sulfate only shows region IA and II, that is an exponential nucleation region and a linear domain wall motion region; region IB is very small and cannot be detected.  $\text{LiH}_3(\text{SeO}_3)_2$  seems to follow the same pattern like  $\text{BaTiO}_3$  that is it shows an exponential low field region and a power law high field region both of which are governed by nucleation. However, the transition from the exponential to the power law occurs at much lower fields than in  $\text{BaTiO}_3$ .

It is interesting to note that  $\text{LiH}_3(\text{SeO}_3)_2$  is in many respects very similar to  $\text{BaTiO}_3$ ; it shows a high electrical spontaneous polarization, shows a strong domain-nucleus interaction which manifests itself in a symmetrical switching pulse whose shape does not depend on electrical field<sup>3)</sup>, and the switching time versus field curve consists only of regions IA and IB (the linear domain wall motion region cannot be reached).

This then raises the question whether all ferroelectrics with a high spontaneous polarization must show a strong domain-nucleus interaction and a switching behavior which is primarily determined by nucleation up



to very high applied fields. The other extreme, a ferroelectric with a very small spontaneous polarization is represented by Guanidine Aluminum Sulfate Hexahydrate (GASH). This material, as a matter of fact, does show a very weak domain-nucleus interaction and a linear behavior in switching time, which already at rather low fields is governed by the domain wall motion time<sup>7</sup>). We will report about the results in GASH in a separate paper.

## 6. Acknowledgement

I would like to thank Dr. R. NITSCHKE and Miss S. ZINGG for the preparation of the excellent single crystals, Dr. W. J. MERZ for many helpful discussions and suggestions and Mr. H. ROETSCHI for his technical assistance.

## Literature

- <sup>1</sup>) R. PEPINSKY, Private Communication, see also Bull. Am. Phys. Soc. II, vol. 4, p. 63 (1959)
- <sup>2</sup>) W. J. MERZ, Phys. Rev. 95, 690 (1954).
- <sup>3</sup>) E. FATUZZO and W. J. MERZ, Phys. Rev. 176, 61 (1959).
- <sup>4</sup>) W. J. MERZ, J. Appl. Phys. 27, 938 (1956).
- <sup>5</sup>) G. J. GOLDSMITH, Private Communication.
- <sup>6</sup>) H. L. STADLER, J. Appl. Phys. 29, 1485 (1958).
- <sup>7</sup>) To be published.

# Amélioration du plateau des compteurs Geiger-Müller à coque métallique et remplissage argon-alcool

par **J. Kern** et **O. Huber**

Institut de Physique de l'Université de Fribourg

(15 VIII 1959)

*Abstract.* The construction of a metallic Geiger-Müller Counter is described. Spurious counts are successfully suppressed by a careful choice of wire diameter. For the elimination of end effects a new arrangement with two concentric guard rings was finally developed. With Argon-Alcohol mixture, the plateau shows a slope of 0,6% over 150 volts in «homogenous» irradiation. Using a collimated beam of gamma rays 0,24% over 160 volts is obtained. It is shown that in the latter case the residual slope is due exclusively to the decreasing of the deadtime with increasing overtension.

## 1. But du travail

Le problème à résoudre était celui de la construction d'un compteur G. M. pour le spectromètre  $\beta$  de notre Institut<sup>1)</sup>. Ce détecteur doit réunir les caractéristiques suivantes:

- a) Un diamètre de cathode de 30 mm pour pouvoir capter un faisceau divergent sortant d'un diaphragme carré de  $20 \times 20$  mm.
- b) Un plateau aussi long et plat que possible pour pouvoir faire des mesures quantitatives précises dans un milieu où la température n'est pas constante.
- c) Une fenêtre mince pour la détection d'électrons de faible énergie.
- d) Une longueur réduite pour limiter le mouvement propre et la sensibilité à un rayonnement  $\gamma$  ambiant éventuel.

## 2. Introduction

La condition c) nous impose l'emploi de gaz ou vapeurs de remplissage non agressifs à une faible pression totale. Nous avons adopté un mélange argon-alcool à la pression de 100 Torr. On aurait pu choisir un autre mélange: MEUNIER, BONPAS et LEGRAND<sup>2)</sup> ont étudié les conditions spectroscopiques que doivent remplir les vapeurs organiques et proposé le méta- et le paraxylène. Le problème des produits de décomposition n'a cependant pas été considéré et très peu de mesures ont été faites avec ces

vapeurs organiques. Pour l'alcool, par contre, de nombreuses mesures quantitatives ont été publiées, auxquelles il est intéressant de se référer. L'alcool est aussi chimiquement moins actif.

Il est pratique, sinon nécessaire, d'employer un compteur facilement démontable à cathode métallique.

CHAUDHRI et FENTON<sup>3)</sup> ont fait une étude systématique sur des compteurs de ce type. Leur cathode avait 22 mm de diamètre et leur anode était limitée par des capillaires en pyrex. Ils ont trouvé les valeurs optimales suivantes: Longueur de l'anode 40 à 50 mm, diamètre de l'anode 0,12 mm, pente du plateau 4% sur 100 volts, longueur du plateau 300 volts.

Il nous paraît utile et possible d'améliorer ce résultat. Nous avons considéré comme acquis que la pente du plateau provient, en grande partie au moins, de deux effets:

1° de l'apparition de décharges parasites d'autant plus nombreuses que la tension augmente;

2° d'effets aux extrémités du compteur.

Pour supprimer le premier de ces effets on peut, comme le propose PUTMAN<sup>4)</sup>, imposer au compteur un temps mort artificiel à l'aide d'un système électronique externe (système de paralysie).

Il y a peut-être une meilleure méthode: FENTON et FULLER<sup>5)</sup> ont mesuré le taux des impulsions parasites en fonction du diamètre de l'anode. A charge par impulsion égale, ils trouvent que ce taux est minimum, et pratiquement nul, pour un diamètre d'environ 0,2 mm. Il semble donc qu'en utilisant ce diamètre on devrait pouvoir supprimer le premier effet.

Des effets aux extrémités donnent également une contribution à la pente du plateau. L'efficacité du compteur augmente avec la surtension de la façon suivante:

a) par un accroissement du volume sensible, c'est-à-dire du volume où la présence d'un électron libre peut provoquer la décharge du compteur.

b) par un accroissement de la multiplication gazeuse à proximité de chaque point de l'anode. Comme l'ont montré indépendamment NAWIJN<sup>6)</sup> et WILKINSON<sup>7)</sup>, l'efficacité autour d'un segment de l'anode est fonction de la multiplication gazeuse, donc du champ électrique local. L'affaiblissement du champ près des supports de l'anode, spécialement lorsqu'ils sont conducteurs, conduit à une efficacité croissante de ces régions en fonction de la surtension, alors que le centre du compteur a atteint dès le début du plateau une efficacité voisine de 100%.

Pour éliminer ces effets de bout, on peut entourer l'anode, à ses extrémités, d'électrodes de garde. Une première méthode consiste à donner à cette électrode le même diamètre que l'anode, comme le proposent ROSSI et STAUB<sup>8)</sup> ou SIKKEMA<sup>9)</sup> pour des compteurs proportionnels. Il ne nous semble pas que la méthode puisse s'appliquer dans le domaine



Geiger, où la décharge n'est pas localisée. La seconde méthode, proposée par COCKROFT et CURRAN<sup>10)</sup>, consiste à entourer l'extrémité de l'anode par un tube coaxial mis, si possible, au potentiel correspondant à celui de son rayon dans la distribution cylindrique non perturbée. Par cette construction la pente de leur plateau est abaissée de 7,4 à 4,4% par 100 volts.

Nous nous sommes proposé d'étudier systématiquement des compteurs de cette dernière construction.

### 3. Méthode expérimentale

La principale difficulté que l'on rencontre, lorsqu'on veut comparer les caractéristiques de divers compteurs, est le manque de reproductibilité des caractéristiques. Mis à part le mode d'irradiation, point sur lequel nous reviendrons, ceci est dû aux différences de remplissage (y compris les impuretés) et, dans une certaine mesure, aux différents états de surface de la cathode. Pour éviter ces inconvénients, nous avons construit différents types de compteurs dans lesquels un paramètre est ajustable de l'extérieur, au moyen d'un aimant, tous les autres restant communs; l'expérience se situe donc entièrement dans les mêmes conditions gazeuses.

Un compteur est représenté schématiquement dans la figure 1. Sauf spécifications contraires, les conditions de l'expérience sont les suivantes: La cathode est en laiton ou laiton nickelé. Elle est polie mécaniquement; nous ne lui avons fait subir aucun traitement chimique. Les électrodes de garde sont en laiton et l'anode en acier inoxydable. Les parties isolantes sont en Cibanit\*).

Chaque système est placé dans un tube de verre. A une extrémité de ce tube on a soufflé un fond; sur l'autre on a scellé une plaque de fer avec de la picéine. La plaque de fer est munie de traversées en verre «Philips». Les connexions électriques sont assurées par des fils de cuivre émaillés, placés à l'intérieur de «spaghettis» en Teflon. Si ces connexions doivent être étendues lors de l'ajustement, on les a enroulées en spirale. Le remplissage et l'évacuation du compteur se fait par un robinet de verre, graissé au silicone.

Chaque compteur neuf est évacué à l'aide d'une pompe à diffusion à huile, tandis qu'il est chauffé à environ 60°C, et ceci pendant 48 heures ou plus, jusqu'à ce que la pression soit descendue au voisinage de la pression limite du poste de pompage. Ces précautions sont absolument nécessaires si l'on veut que les caractéristiques soient stables dans le temps.

Les pressions des gaz de remplissage sont mesurées avec un manomètre à mercure. L'argon a une pureté garantie de 99,99%; l'alcool éthylique

\*) Produit de CIBA à Bâle.

provient d'ampoules scellées du commerce et a une pureté garantie de 99,1%. Si le compteur n'est pas soigneusement dégazé les gaz désorbés des parois contribuent beaucoup plus fortement aux impuretés du mélange que les impuretés des gaz de remplissage. Sur une pression totale de 100 Torr, la pression partielle d'alcool initiale est de 14 à 16 Torr. Après quelques heures cette pression partielle a diminué d'environ 4 Torr par suite d'adsorption.

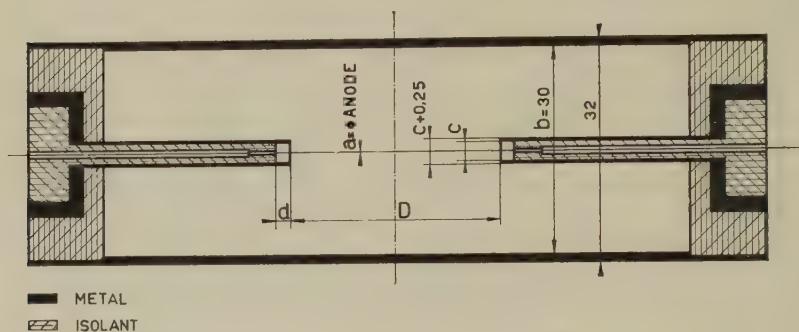


Fig. 1

Schéma du compteur

$d$  est négatif lorsque l'isolation est en retrait (comme sur la figure)

Le taux de comptage moyen a été maintenu dans l'ordre de 40 impulsions par seconde. La source du rayonnement est constituée par du  $\text{Co}^{60}$ . L'irradiation a été faite de deux manières :

a) *Homogène*, en plaçant la source à une distance suffisante du compteur pour que le rayonnement soit réparti uniformément sur toute sa longueur.

b) *Concentrée*, en interposant un canal de plomb entre la source et le compteur pour affaiblir le rayonnement aux extrémités de l'anode.

La résistance de travail est de  $3 \text{ M}\Omega$ . Le potentiel des électrodes de garde est fixé par un potentiomètre ohmique d'environ  $15 \text{ M}\Omega$  entre la cathode, mise à la terre, et la haute tension stabilisée.

On introduit les symboles et définitions suivants :

$V$  = tension statique d'anode.

$V_g$  = tension des électrodes de garde.

$R = 1000 \cdot V_g / V$ .

$R_{th}$  = valeur de  $R$  qui donne aux électrodes de garde le potentiel correspondant à celui de leur rayon dans la distribution cylindrique non perturbée.

$N$  = taux de comptage (coups/sec).

$\Delta N$  = accroissement du taux de comptage pour une augmentation de tension  $\Delta V = 100$  volts.

$V_s$  = seuil de comptage. Le seuil de discrimination est de 0,6 volts.

$V_d$  = Tension pour laquelle le compteur est déchargé par de nombreuses décharges parasites (cf. § 5).

$L = V_d - V_s$  = longueur du palier.

Par pente relative du plateau nous entendons le rapport  $\Delta N/N$ .  $N$  est pris au milieu du plateau.

Par plateau nous entendons la partie la moins inclinée du palier.

$T_m$  = Temps mort.

#### 4. Compteur I

Caractéristiques: Longueur  $D$  variable; diamètre de l'anode  $a = 0,2$  mm; diamètre des électrodes de garde  $c = 3$  mm; retrait de l'isolation  $d = -2$  mm.  $R_{th} = 460$ . Irradiation homogène.

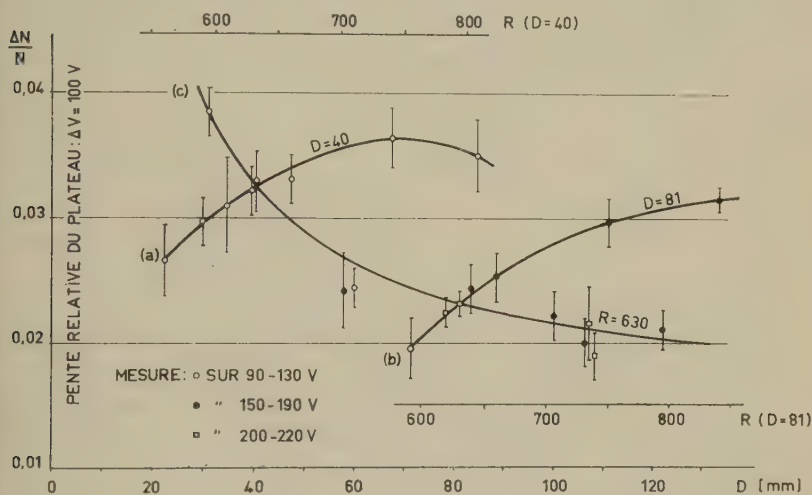


Fig. 2

Compteur I.  $a = 0,2$  mm;  $c = 3$  mm;  $d = -2$  mm; Irradiation homogène  
Pente du plateau en fonction de la longueur  $D$  et du rapport  $R$

Avec ce compteur nous avons étudié la pente du plateau en fonction de la longueur  $D$  de l'anode et en fonction du rapport  $R$ . Nous avons irradié le compteur de façon homogène afin que les effets aux extrémités soient bien mis en évidence. Le résultat des mesures est reporté dans la figure 2.

Deux mesures à longueur  $D$  constante (courbes  $a$  et  $b$ ) montrent l'amélioration de la pente du plateau lorsque  $R$  se rapproche de  $R_{th}$ . Pour une valeur  $R$  constante, égale à 630 (courbe  $c$ ), le plateau s'améliore lorsque le compteur s'allonge, par suite de la diminution relative des effets aux extrémités.



Il n'était pas possible d'abaisser  $R$  jusqu'à  $R_{th}$ : Lorsqu'on observe la longueur du palier  $L$  en fonction de valeurs décroissantes de  $R$ , on constate qu'elle est constante jusqu'à une certaine valeur critique de  $R$  que nous appellerons  $K$ . Elle diminue ensuite rapidement, de sorte que tout plateau utile vient à disparaître avant que  $R$  n'atteigne  $R_{th}$ .

### 5. Compteur II

Caractéristiques:  $D = 80$  mm;  $a$  variable;  $c = 3$  mm;  $d = -2$  mm. Irradiation concentrée.

Ce système est constitué par un long tube de verre dans l'axe duquel est tendu un fil d'anode se composant de plusieurs sections.

On a représenté dans la figure 3 la relation entre  $L$  et  $R$  pour les différentes valeurs de  $a$ .

Nous devons faire quelques remarques sur la manière dont a été déterminé  $L$ : S'il n'y a aucune difficulté concernant  $V_s$ , il faut préciser les

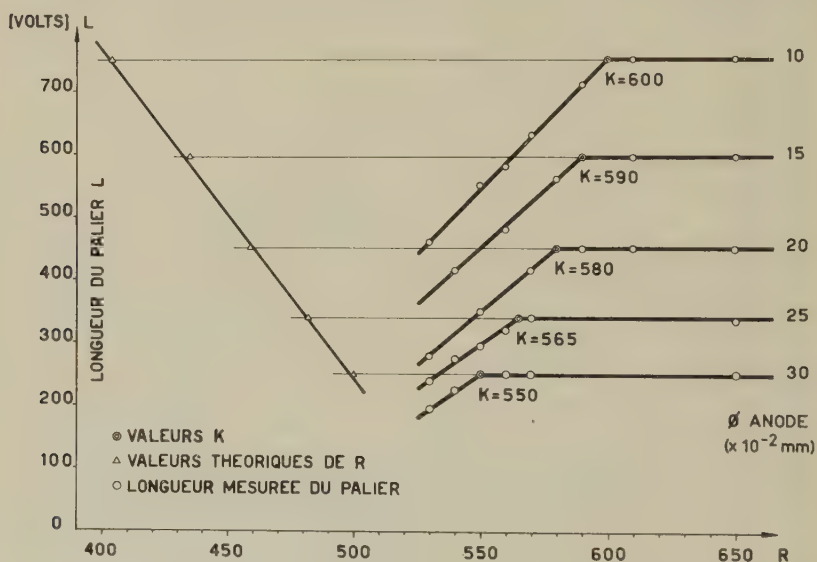


Fig. 3

Compteur II.  $D = 80$  mm;  $c = 3$  mm;  $d = -2$  mm

Longueur du palier en fonction de  $R$  pour différents diamètres de l'anode

critères que nous avons choisis pour la détermination de  $V_d$ . Pour les valeurs de  $R$  inférieures à  $K$ , le taux des impulsions augmente lentement jusqu'à une certaine tension où, d'autant plus subitement que le diamètre des électrodes de garde est petit, des décharges continues apparaissent. Ces décharges sont accompagnées d'impulsions géantes. Pour les valeurs

$R$  plus grandes que  $K$ , par contre, le taux des impulsions augmente continuellement avec la tension jusqu'à de très grandes valeurs et la distinction de véritables décharges continues est beaucoup plus difficile. Des impulsions géantes commencent à apparaître à des tensions plus petites que celles qui provoquent des décharges continues. Elles sont accompagnées de trains de décharges. C'est pour un certain taux de ces décharges, observées à l'oscillographe, que nous avons arbitrairement fixé la tension  $V_d$ . La précision de reproduction de la détermination peut être estimée à 10 volts pour des mesures consécutives.

On constate que la tension  $V_d$  diminue lorsqu'on augmente le diamètre de l'anode, tandis que la tension de seuil augmente. Il en résulte un double raccourcissement de  $L$ .

Le résultat des mesures de la pente du plateau en fonction de  $a$  et de  $R$  est représenté dans la figure 4. Ces mesures ont été effectuées en con-

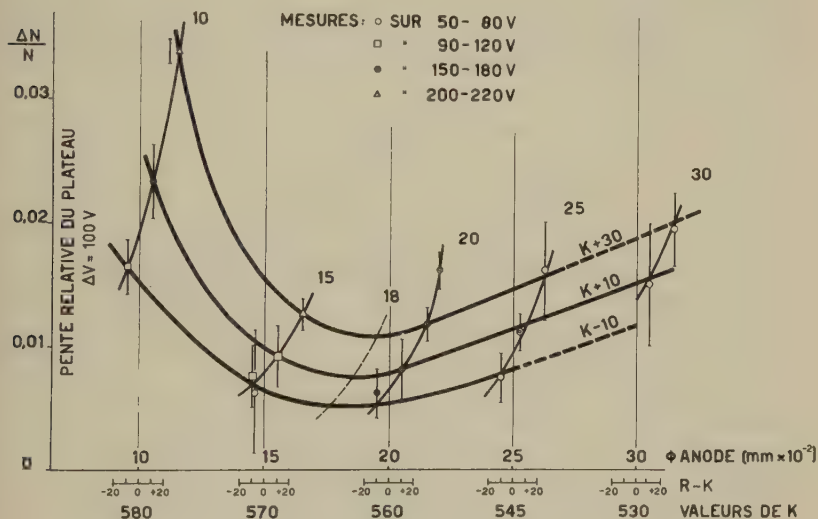


Fig. 4

Compteur II.  $D = 80 \text{ mm}$ ;  $c = 3 \text{ mm}$ ;  $d = -2 \text{ mm}$ 

Irradiation concentrée

Pente du plateau en fonction de  $R$  et de  $a$ 

centrant l'irradiation sur le milieu du compteur: 70% des décharges sont ainsi déclenchées sur la moitié centrale de l'anode. L'effet des extrémités est réduit et l'influence du diamètre de l'anode est mieux mise en évidence.

Comme on le voit dans la figure 3, la valeur  $R_{th}$  ne peut être imposée aux électrodes de garde. On a alors comparé les plateaux mesurés avec des valeurs  $R - K$  égales. En dépit de l'arbitraire de ce procédé, on ob-

tient une pente minimum pour un diamètre de 0,18 mm, en concordance avec les résultats de FENTON et FULLER<sup>5)</sup> obtenus par une tout autre méthode.

Ce résultat ne peut être considéré comme tout à fait définitif. La différence  $K - R_{th}$  est plus grande pour les petits que pour les grands diamètres. Ces derniers sont favorisés par notre mode de comparaison, puisque les plateaux deviennent meilleurs si  $R$  s'approche de  $R_{th}$ . Si donc un diamètre plus grand que 0,18 mm a peu de chance de donner une meilleure pente, il n'est pas exclu a priori, sur la base de nos seules mesures, qu'un plus petit diamètre ne soit plus favorable si l'on pouvait faire la seule comparaison correcte, soit avec  $R = R_{th}$  pour tous les diamètres.

### 6. Compteur III/1

Caractéristiques:  $D = 50$  mm;  $a = 0,18$  mm;  $c = 3$  mm;  $d$  variable.  $R_{th} = 450$ . Irradiation concentrée.

Nous avons voulu étudier l'influence du retrait de l'isolation des électrodes de garde sur la valeur  $K$ . La figure 5 montre que la valeur  $R_{th}$

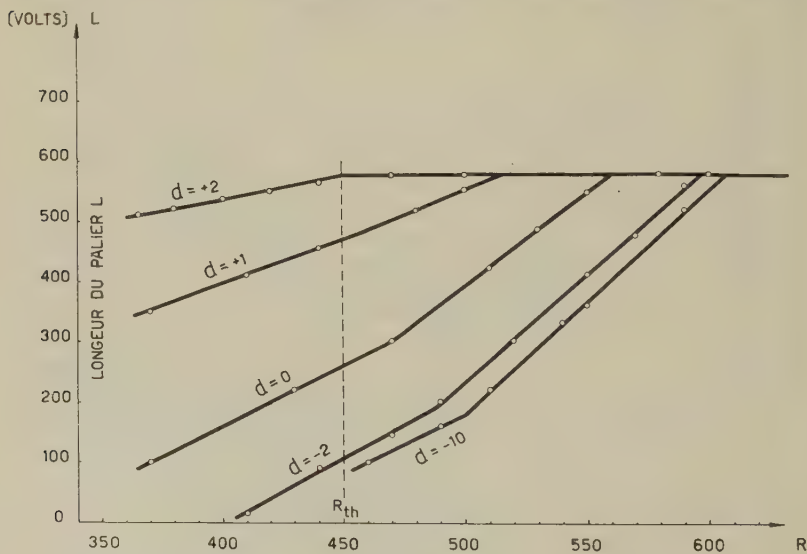


Fig. 5

Compteur III.  $D = 50$  mm;  $a = 0,18$  mm;  $c = 3$  mm  
Longueur du palier en fonction de  $R$  pour différentes valeurs de  $d$

peut être atteinte sans perte sur la longueur du palier pour une saillie de l'isolation  $d = +2$  mm. Dans ce cas le volume sensible du compteur a l'inconvénient d'être partiellement limité par une surface isolante sus-



ceptible de se charger et est ainsi soumis à des fluctuations. Si l'on limite le faisceau irradiant par une collimation (une fenêtre dans la cathode, s'il s'agit d'électrons) cet inconvénient n'a plus d'influence. La figure 6 représente la pente du plateau mesurée avec collimation en fonction de  $R$ , avec  $d = +2$  mm. La pente la plus faible est obtenue pour  $R = R_{th}$ .

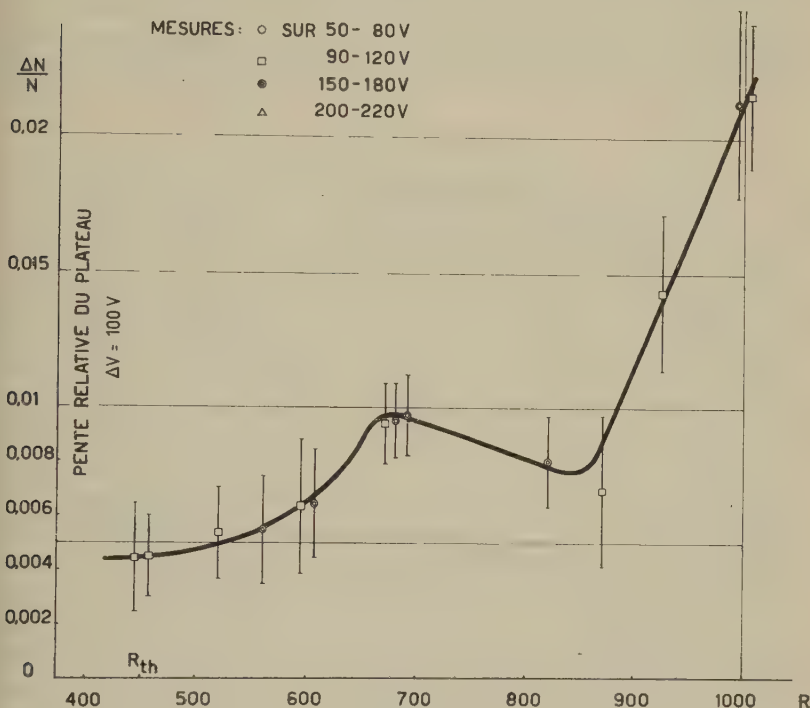


Fig. 6

Compteur III.  $D = 50$  mm;  $a = 0,18$  mm;  $c = 3$  mm;  $d = +2$  mm

$R_{th} = 450$ . Irradiation concentrée

Pente du plateau en fonction de  $R$

Nous avons appliqué ce résultat à la construction d'un compteur dont la fenêtre de mica de  $24 \times 24$  mm, épousant la forme du compteur, est passée intérieurement à l'aquadag; avec ce compteur, dont la longueur  $D$  était égale à 74 mm, nous avons obtenu une pente de 0,5% sur 150 volts.

### 7. Compteur III/2

Caractéristiques:  $D = 56$  mm;  $a = 0,10$  mm;  $c = 3$  mm;  $d$  variable.  
 $R_{th} = 404$ . Irradiation concentrée.

Nous avons vu au paragraphe 5 qu'il n'était pas exclu qu'un diamètre d'anode plus petit que 0,18 mm ne permette d'obtenir un meilleur plateau, au cas où le potentiel théorique serait appliqué aux électrodes de garde. Nous avons voulu examiner ce point.

La figure 7 montre la variation de  $K$  en fonction de  $d$ . La valeur de  $K$  devient égale à  $R_{th}$  lorsque la saillie de l'isolation atteint + 1,3 mm environ.

Nous avons fixé  $d$  à + 2 mm et mesuré la pente du plateau en fonction de  $R$  jusqu'à  $R_{th}$ . Nous n'avons pas pu obtenir systématiquement des

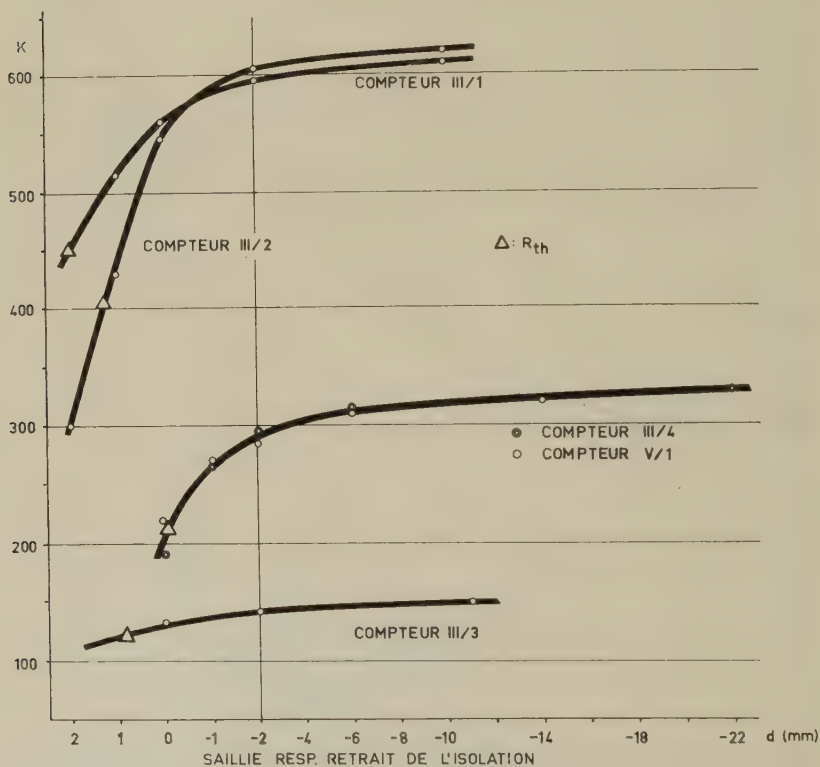


Fig. 7

Variation de  $K$  avec la saillie (+  $d$ ), resp. le retrait (-  $d$ ), de l'isolation pour différents compteurs

pentés inférieures à 1,1%, pente nettement supérieure à celles obtenues avec le compteur III/1. La conclusion s'impose donc que les mesures de FENTON et FULLER<sup>5)</sup> décrivent correctement l'influence du diamètre de

l'anode sur la pente du plateau et que le diamètre mesuré  $a = 0,18$  mm est optimum. Nous avons adopté cette valeur de  $a$  pour la suite de nos expériences.

Les causes de l'influence sensible du diamètre de l'anode sur la pente du plateau n'ont pas été éclaircies jusqu'à présent. Une explication<sup>5)</sup> serait la formation d'ions de types différents. L'effet pourrait aussi être dû à l'augmentation de la probabilité d'ionisation par les ions négatifs lourds dans les champs élevés. Cet effet devrait dépendre du taux des impuretés dans le gaz.

### 8. Compteur IV/1

Caractéristiques:  $D = 72$  mm;  $a = 0,18$  mm;  $c$  variable;  $d = -2$  mm. Irradiation homogène.

Ce compteur a pour but d'étudier s'il est possible que  $K$  atteigne  $R_{th}$  en ajustant le diamètre  $c$  des électrodes de garde, tout en conservant l'isolation en retrait, pour pouvoir obtenir un compteur utilisable avec une irradiation homogène.

Dans un tube de verre des paires d'électrodes de garde de différents diamètres sont collées sur l'anode tendue. La cathode peut être déplacée d'une paire sur l'autre.

Le résultat des mesures est reporté dans la figure 8. L'extrapolation de la courbe (c) doit donner une valeur  $K - R_{th} = 0$  pour  $c = a$ . Nous avons dit plus haut que ce cas ne convient probablement pas pour l'utilisation d'un compteur dans le domaine de Geiger. Lorsqu'on augmente le diamètre  $c$ , la différence  $K - R_{th}$  augmente d'abord, passe par un maximum pour  $c \cong 3$  mm, puis décroît. A partir de  $c = 9$  mm, la différence ne diminue plus que très lentement. Notre construction ne nous permettant pas de mesurer avec une électrode de garde de plus de 10,8 mm de diamètre, et la précision de la détermination de  $K$  étant de  $\pm 5$ , nous ne pouvons pas donner d'indication plus précise sur le comportement dans cette région.

Nous avons évalué nos résultats encore d'une autre manière, afin de pouvoir comparer les mesures de  $K$  obtenues pour les différentes valeurs de  $c$  avec les mesures précédemment effectuées avec  $c = 3$  mm (compteurs I à III). Pour une tension d'anode fixe de 1000 volts et un rapport  $R = K$  placé aux électrodes de garde, nous avons calculé le potentiel  $V_3$  qui régnerait à l'emplacement d'une électrode virtuelle de 3 mm de diamètre. Nous avons supposé pour ce calcul une répartition cylindrique non perturbée du potentiel entre l'anode et l'électrode (réelle ou virtuelle) extérieure. Les valeurs  $K$  pour les différentes valeurs de  $c$  sont ainsi rapportées au diamètre  $c = 3$  mm,  $V_3$  étant la valeur de correspondance. On a donc:  $V = 1000$  volts,  $V_g = K$  volts et



$$V_3 = K + (V - K) \cdot \frac{\log c/3}{\log c/a}$$

Les valeurs  $V_3$ , qui sont représentées dans la figure 8 par la courbe (d), sont à comparer avec la valeur  $R_{th} = 450$  pour  $c = 3$  mm. La différence  $V_3 - 450$  se comporte en fonction de  $c$  d'une façon analogue à la différence  $K - R_{th}$  que nous avons discutée plus haut.

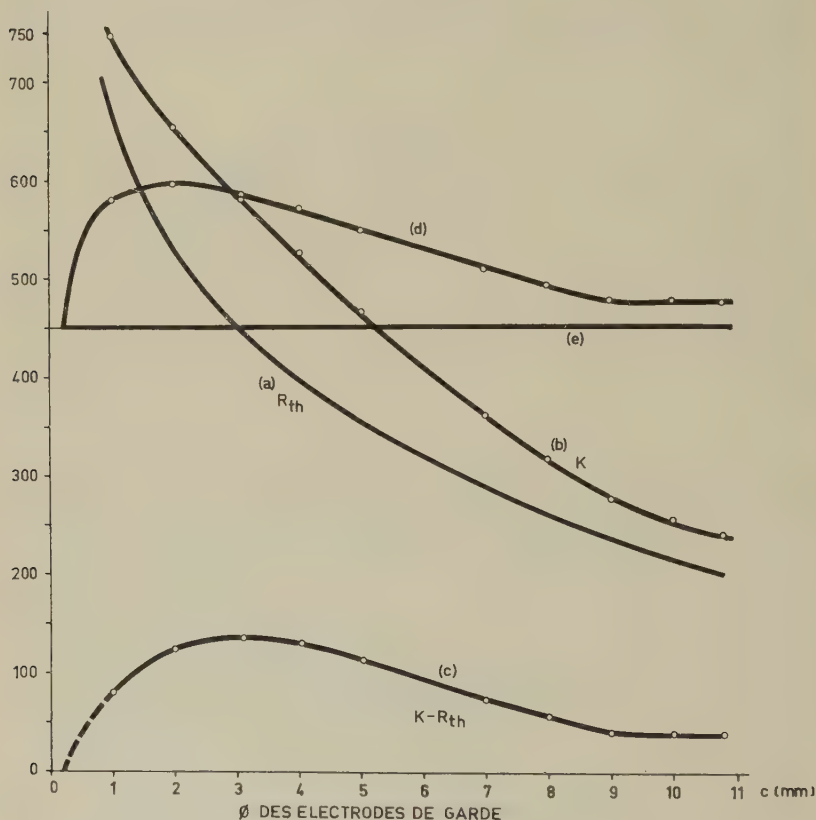


Fig. 8

Compteur IV/1

(a) resp. (b) = valeurs de  $R_{th}$ , resp.  $K$ , en fonction de  $c$ ; (c) = différence  $K - R_{th}$  en fonction de  $c$ ; (d) et (e), voir le texte

### 9. Influence du matériau d'isolation. Compteur IV/2

Caractéristiques:  $D = 78$  mm;  $a = 0,18$  mm;  $c = 7$  mm;  $d = -2$  mm.  $R_{th} = 287$ . Irradiation homogène.

Tableau I

Matière	K	Pente du plateau en %			
		R = 340	R = 400	R = 460	R = 520
Cibanit . . . . .	363 ± 3	0,90 ± 0,2	1,60 ± 0,15	2,18 ± 0,18	2,67 ± 0,25
Cibanit cône . . . .	390 ± 10	2,87 ± 0,1	3,0 ± 0,13	2,52 ± 0,12	2,71 ± 0,2
Stumatite . . . . .	Indéfini	59 ± 3	11,8 ± 0,4	6,71 ± 0,25	4,05 ± 0,12
Teflon . . . . .	364 ± 3	3,76 ± 0,25	4,01 ± 0,17	3,08 ± 0,25	2,75 ± 0,2
					3,01 ± 0,15

Tableau II

Surtension:		+ 100 Volts		+ 200 Volts	
$N_0$	$N_{100}$	$\frac{N_0 - N_{100}}{N_{100}} \%$	$N_{200}$	$\frac{N_0 - N_{200}}{N_{200}} \%$	Pente %
35	34,721	0,8	34,793	0,6	0,21
75	73,73	1,73	74,056	1,27	0,45
100	97,75	2,3	98,33	1,7	0,59
350	323,9	8	330,3	6	1,97

Ce compteur est d'une construction analogue à celle du compteur IV/1. Ici, cependant, les électrodes de garde ont toutes un diamètre de 7 mm, intentionnellement choisi assez grand pour mettre en évidence l'influence du matériau isolant. Trois paires d'électrodes sont isolées respectivement avec: Cibanit, Teflon et Stumatite (matière céramique), la forme des électrodes étant celle représentée dans la figure 1. Une quatrième paire, en cibanit, est d'un type différent: au lieu d'être cylindrique, l'isolation se termine par un cône de demi-ouverture  $45^\circ$  dont la pointe, dirigée vers l'intérieur du compteur, est en retrait de 2 mm par rapport à l'extrémité métallique de l'électrode. On a mesuré la valeur  $K$  et la pente du plateau. Les résultats sont réunis dans le tableau I.

La valeur  $K$  pour l'électrode en Stumatite n'a pas une valeur constante: lorsque le remplissage est neuf, elle est égale à la valeur mesurée avec le Teflon ou la Cibanit, mais elle augmente lorsqu'on utilise le compteur. Après  $5 \cdot 10^6$  coups environ, nous avons mesuré  $410 \pm 10$  et après  $10^7$  coups  $445 \pm 10$ .

Pour des valeurs de  $R$  de l'ordre de 600, la pente du plateau est indépendante de la nature de l'isolation. Il n'en est pas de même lorsque  $R$  s'approche de  $R_{th}$ . Les résultats les plus favorables sont obtenus avec la Cibanit.

On peut imaginer les processus qui influencent la pente du plateau:

- a) des charges négatives se fixent sur l'isolant pendant la décharge, puis elles sont arrachées, donnant lieu à des décharges parasites.
- b) des charges positives se fixent sur l'isolant. Ces charges influencent défavorablement le champ sur l'extrémité de l'anode.

Il est possible que les deux processus aient lieu concurremment, au moins dans le cas de la Stumatite. Le second effet est le plus probable dans le cas de la Cibanit. Pour l'électrode conique un accroissement de la surface et un déplacement du point  $K$  de  $+30$  expliquent les résultats moins favorables que pour l'isolation cylindrique.

Le comportement commun pour les valeurs élevées de  $R$  vient de ce que le champ électrique et la multiplication gazeuse sont alors faibles à proximité de l'électrode de garde, et qu'ainsi les deux processus sont fortement affaiblis.

Il serait naturellement intéressant de connaître le comportement d'autres isolants, de différentes sortes de verre ou d'Araldite par exemple. Avec ce dernier matériau il faut prendre garde à son affinité pour l'alcool.

Pour la suite de nos travaux nous avons continué à utiliser la Cibanit.

### 10. Compteur III/3

Caractéristiques:  $D = 66$  mm;  $a = 0,18$  mm;  $c = 16$  mm;  $d$  variable.  
 $R = R_{th} = 123$ . Irradiation homogène.



Pour éviter si possible les effets dus à l'attachement éventuel d'électrons sur l'isolant, on a donné à l'isolation la forme dessinée dans la figure 9. La pente du plateau en fonction du retrait de l'isolation  $-d$ , représentée dans la figure 9, atteint un minimum pour  $d = -8$  mm environ, avec une valeur de 1,3%.

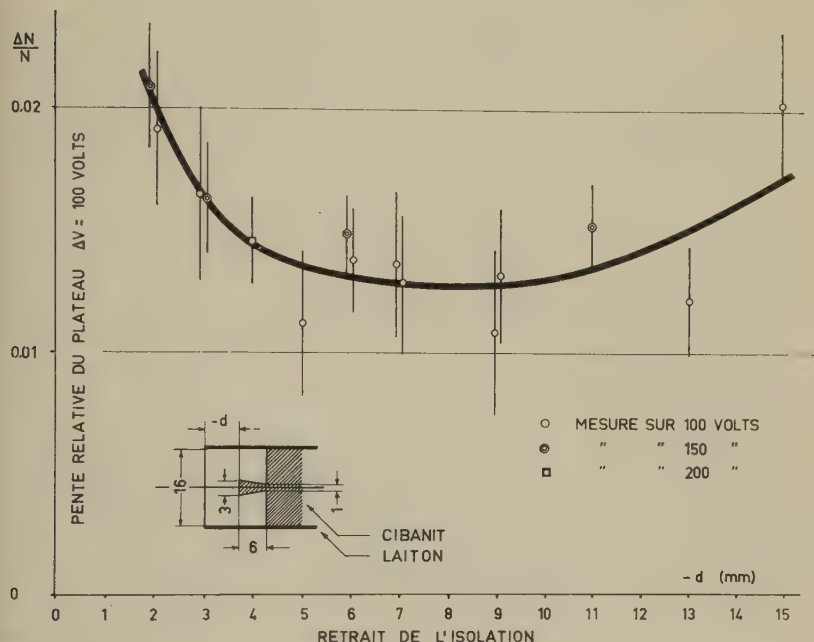


Fig. 9

Compteur III/3

 $D = 66$  mm;  $a = 0,18$  mm;  $c = 16$  mm;  $R = R_{th} = 123$ 

Irradiation homogène

Schéma des électrodes de garde. Pente du plateau en fonction du retrait de l'isolation

L'effet d'écran de l'électrode de garde a un rendement d'environ 60%. Nous entendons par là que si un allongement de  $D$  d'un millimètre provoque une augmentation du taux de comptage de 100 coups par unité de temps, le retrait d'un demi-millimètre supplémentaire de l'isolation (aux deux extrémités) ne provoque une augmentation du taux que de 40 coups par unité de temps.

Nous pensons que l'isolation des électrodes de garde se charge principalement avec des ions *positifs*. Il en résulte que pour des petits retraits, un grand nombre de décharges ayant leur origine aux extrémités du

compteur ne sont pas suffisamment amplifiées par suite de l'affaiblissement du champ. Lorsque le retrait augmente, cet effet diminue par suite de l'effet d'écran des électrodes et le plateau a une meilleure pente. Lorsqu'on augmente encore le retrait, c'est le déplacement du point *K* qui influence défavorablement le comportement (cf. fig. 7).

### 11. Remarques sur la tension $V_d$

La théorie de KORFF et PRESENT<sup>11)</sup> sur les phénomènes de coupure de la décharge explique comment les décharges parasites peuvent provenir de l'émission secondaire d'électrons à la cathode au moment de la neutralisation des ions positifs. Le nombre primaire des décharges parasites doit être proportionnel au nombre d'ions neutralisés.

L'augmentation rapide du taux de comptage à la fin du palier et la défaillance progressive du mécanisme d'auto-coupure sont certainement dus à deux autres types d'effets au moins:

- a) la diminution du temps mort avec l'augmentation de la surtension et du taux de comptage;
- b) l'augmentation du champ électrique à la surface où se neutralisent les ions.

La diminution du temps mort lorsqu'on augmente la surtension peut amener le compteur dans un état d'instabilité. Cet effet devrait être sensible si le temps mort devient comparable au temps nécessaire à un électron arraché à la cathode pour atteindre le volume actif.

La possibilité d'un effet b) a été envisagée par KORFF et PRESENT dans leur théorie. Elle n'a cependant pas été prise en considération pour les calculs, sa contribution devant être négligeable. (Leur argument est que la vitesse radiale (drift) est de l'ordre du dixième de la vitesse thermique et que l'énergie cinétique acquise entre deux collisions est inférieure à 0,1 eV.)

L'expérience semble cependant suggérer que la probabilité d'émission d'électrons est sensible aux variations du champ électrique à la surface où a lieu la neutralisation. En fait, la valeur de 0,1 eV n'est plus correcte pour les diamètres de l'ordre de quelques millimètres des électrodes de garde, à la surface desquelles une certaine charge est neutralisée. De plus cette énergie est calculée dans le champ électrique statique; la valeur effective au moment où a lieu la neutralisation pourrait être appréciablement supérieure.

Mentionnons aussi que pour la comparaison de la longueur du palier de deux compteurs il faut tenir compte de l'influence de la capacité cathode-anode. L'influence de cette capacité a été discutée par Montgomery et Montgomery<sup>12)</sup>. Nous pensons que la différence de longueur du palier entre les compteurs IV et VI (cf. § 14) est due à cet effet.

Examinons maintenant dans quelle mesure la variation de  $V_d$  dans les différents types de compteurs peut être expliquée qualitativement à l'aide des considérations précédentes.

En dessous du point  $K$ , la variation de  $V_d$  est très grande en fonction de  $R$  (cf. par exemple les fig. 3 et 4). Dans ce cas les décharges parasites sont principalement déclanchées aux électrodes de garde: Lorsque  $R$  diminue, non seulement un plus grand nombre d'ions viennent s'y neutraliser, mais encore le champ superficiel augmente.

Pour les valeurs de  $R$  plus grandes que  $K$  les décharges parasites ont leur origine à la cathode. Le champ  $y$  est faible et la charge par impulsion n'augmente que lentement avec la tension, ce qui expliquerait la plus grande difficulté à déterminer  $V_d$ .

A tension  $V$  constante, le champ à la surface de la cathode est d'autant plus grand que le diamètre de l'anode est grand. C'est pourquoi  $V_d$  est plus petit pour les grandes que pour les petites valeurs de  $a$ , lorsque  $R$  est plus grand que  $K$ . On voit sur la fig. 3 qu'il existe une relation linéaire entre  $R_{th}$  et la longueur maximum du palier, obtenue pour  $R$  plus grand que  $K$ . On trouve cependant avec une précision du même ordre une relation linéaire entre  $L_{max}$  et  $1/R_{th}$ . Il n'y a pas grand sens à rechercher une interprétation quantitative précise aussi longtemps qu'un meilleur critère n'aura pas été trouvé pour  $V_d$ .

Si l'isolation de l'électrode de garde est repoussée de  $d = + 2$  mm vers des valeurs négatives, la charge neutralisée à l'électrode croît certainement, la croissance étant très rapide au début. On comprend alors le déplacement toujours plus lent de  $K$ . La charge neutralisée pourrait d'ailleurs être directement mesurée (courant d'électrode).

La diminution de  $(K - R_{th})$  en fonction de  $c$  (fig. 8) serait due à la diminution du champ à la surface intérieure des électrodes de garde. Pour des petites valeurs de  $c$  (entre  $a$  et 3 mm) cet effet est surcompensé par la rapide diminution du nombre d'ions collectés (zéro pour  $c = a$ ).

Plus inattendue est l'ampleur de la différence des valeurs  $K$  entre les électrodes à isolation conique et à isolation cylindrique du compteur IV/2 (§ 9, tableau I). Nous avons supposé que l'isolation se charge positivement: soit que la densité de charge soit plus petite sur l'isolation conique que sur l'isolation cylindrique, soit même qu'elle soit comparable, la répulsion des ions créés dans la décharge par ces charges statiques aura pour effet qu'une plus grande charge sera neutralisée aux électrodes de garde avec isolation conique.

Deux faits viennent encore supporter notre hypothèse b) sur l'influence du champ électrique à la surface où se neutralisent les ions:

1. L'importance de l'état de surface de la cathode au point de vue aspérités.

2. Habituellement l'anode est terminée par un épaissement conducteur. A la surface de cet épaissement on a une tension supérieure à celle qui correspond à son rayon dans la distribution cylindrique non perturbée. Il en résulte un champ superficiel à la cathode plus grand aux extrémités qu'au centre. Un certain nombre d'ions, que ce soit par diffusion ou répulsion électrostatique entre eux, viennent se neutraliser dans ces régions où la probabilité de création d'électrons secondaires est plus grande. Le palier est alors beaucoup plus court que celui que nous obtenons.

## 12. Compteur III/4

Caractéristiques:  $D = 76$  mm;  $a = 0,18$  mm;  $c = 10$  mm;  $d$  variable.  $R = 200$ .  $R_{th} = 214$ . Isolation cylindrique. Irradiation homogène.

La pente en fonction du retrait de l'isolation est représentée dans la figure 10. Le comportement est semblable à celui du compteur III/3 et explicable pour les mêmes raisons. Le plateau et le palier sont cependant un peu plus courts. Pour  $d \cong -6$  mm, la pente est la plus faible. Dans ce cas on a une valeur  $R$  sensiblement plus petite que  $K$  (cf. fig. 7), d'où une certaine instabilité à la fin du plateau: occasionnellement un train de quelques centaines de décharges parasites vient perturber le fonctionnement. Le compteur III/3 ne présentait une même instabilité que pour des tensions  $V$  d'au moins 50 volts plus élevées.

L'effet d'écran de ce compteur III/4 a un rendement d'environ 75%.

## 13. Nouveau type d'électrodes de garde

Pour diminuer les inconvénients dus à la présence des parties isolantes, nous avons construit un système à double électrode, représenté dans la figure 11. L'électrode interne a le diamètre bien étudié de 3 mm, l'isolation dépassant de  $+2,5$  mm: son potentiel théorique  $R_{th} \cdot V/1000$  peut être ainsi appliqué sans danger. L'électrode externe a un diamètre égal à  $c_1$ , fixé pour commencer à 10 mm. L'isolation intermédiaire a un retrait d'un millimètre sur l'électrode intérieure.

L'électrode externe a pour but de faire écran; nous avons mesuré avec le compteur III/4 que le rendement était d'environ 75% pour un diamètre de 10 mm (et pour le rayonnement du  $\text{Co}^{60}$ ). L'électrode interne a pour but d'empêcher l'affaiblissement du champ électrique dû à la présence de charges positives sur l'isolation intermédiaire.

Pour déterminer l'influence du paramètre  $e$  (cf. fig. 11), nous avons fait quelques essais sur un compteur fixe, démonté et modifié entre chaque série d'expériences. Nous avons constaté que la valeur  $e = 0$  était convenable.



## 14. Compteur V/1

Caractéristiques:  $D = 104$  mm;  $a = 0,18$  mm;  $c_1 = 10$  mm;  $c_2 = 3$  mm;  $d$  variable;  $e = 0$ .  $R_{th}^1 = 214$ ;  $R_{th}^2 = 450$ . Irradiation homogène. Ce compteur permet l'étude des caractéristiques en fonction de  $d$ .

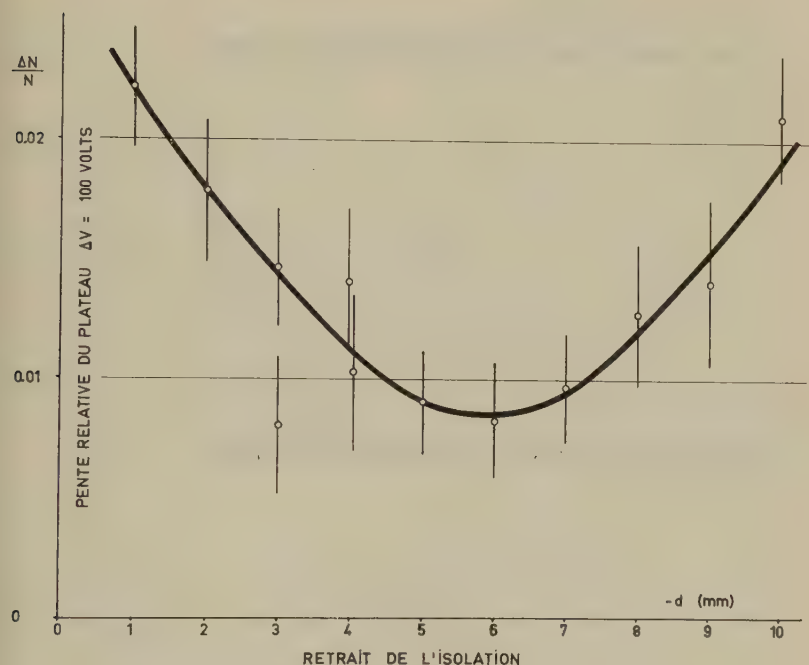


Fig. 10

Compteur III/4

 $D = 76$  mm;  $a = 0,18$  mm;  $c = 10$  mm;  $R_{th} = 214$ .  $R = 200$ 

Irradiation homogène

Pente du plateau en fonction du retrait de l'isolation

Nous avons comparé les valeurs de  $K$  en fonction de  $d$  de ce compteur avec celles du compteur III/4 (fig. 7). Aux erreurs de mesure près, ces deux courbes sont identiques. Nous en concluons que l'arrêt apparent de la diminution des valeurs  $K - R_{th}$  à partir de  $c = 9$  (fig. 8) n'est pas dû à des effets d'isolation, dans le genre de ceux constatés au paragraphe 8.

Il convient de remarquer que la valeur moyenne  $K$  mesurée pour les compteurs III/4 et V/1, soit 290 pour  $d = -2$ , est supérieure à celle reportée dans la figure 8, soit 255, pour des conditions identiques à celles du compteur III/4 ( $c = 10$  mm,  $d = -2$  mm). Ceci provient de ce que la longueur maximum du palier était de 630 volts pour les compteurs

III/4 et V/1 et de 530 pour le compteur IV. Cette différence vient probablement de ce que les capacités anode-cathode, par suite de constructions très différentes, étaient environ 3 fois plus petites pour les types III/4 et V/1 que pour le type IV (cf. § 11).

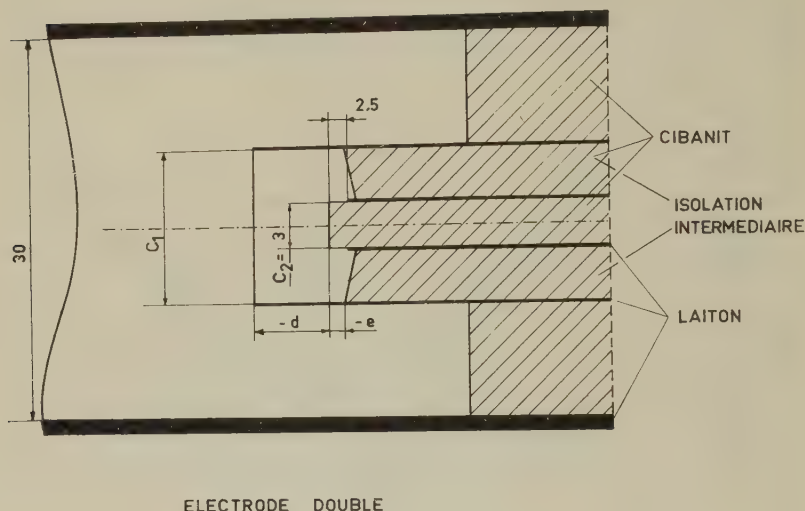


Fig. 11

Electrode double

La longueur  $D$  du compteur est mesurée entre les extrémités des électrodes externes

Le résultat des mesures de la pente du plateau en fonction de  $d$  pour une irradiation homogène, est représenté dans la figure 12. Le rapport  $R_2$  du potentiel de l'électrode de garde interne à la tension d'anode  $V$  a été maintenu constant, égal à 430, soit légèrement inférieur au rapport  $R_{th}^2$  (450). Pour les électrodes externes, on a fait deux séries de mesures, soit avec les rapports  $R_1 = 210$  et 190 ( $R_{th}^1 = 214$ ). Dans les limites de l'erreur statistique ces résultats ne diffèrent pas.

La pente s'améliore de façon sensible lorsqu'on retire l'électrode interne jusqu'à moins 5 ou 6 mm, pour atteindre environ 0,5%. C'est pour ces valeurs de  $-d$  que le plateau est le plus long. Pour des retraits plus grands le plateau s'arrête plus tôt à cause du déplacement du point  $K$ , tandis que la tension nécessaire pour atteindre la limite inférieure du plateau reste constante; pour des retraits plus petits, le déplacement vers de plus hautes tensions de la limite supérieure du plateau est plus petit que celui de la limite inférieure.

Les valeurs  $d = -5$  et  $-6$  mm peuvent être considérées comme donnant le meilleur fonctionnement, même si avec des valeurs un peu plus grandes on obtient une pente encore meilleure.

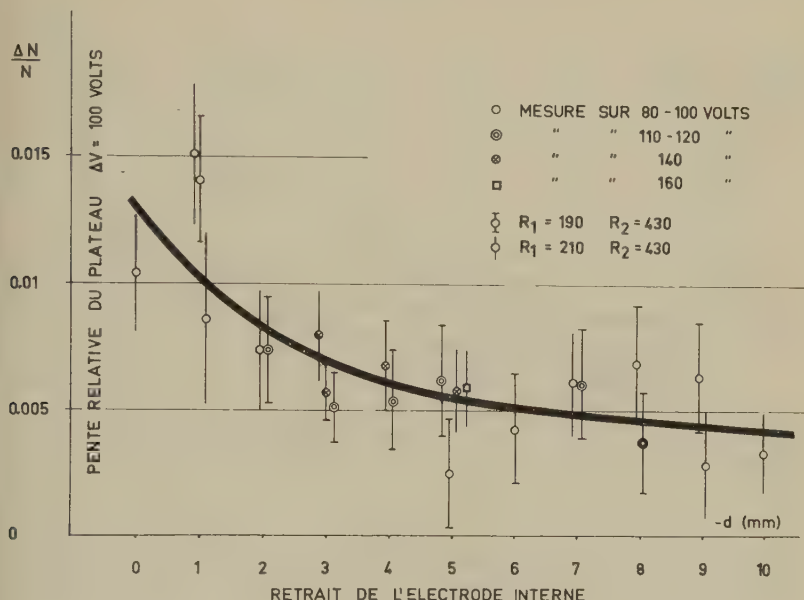


Fig. 12

Compteur V/1

 $D = 104$  mm;  $a = 0,18$  mm;  $c_1 = 10$  mm;  $c_2 = 3$  mm;  $e = 0$ 

Irradiation homogène

Pente du plateau en fonction du retrait de l'isolation

### 15. Compteur V/2

Caractéristiques:  $D = 104$  mm;  $a = 0,18$  mm;  $c_1 = 10$  mm;  $c_2 = 3$  mm;  $d = -5$  mm;  $e = 0$ .  $R_{th}^1 = 214$ ;  $R_{th}^2 = 450$ .

Ce compteur a des dimensions fixes. Les électrodes de diamètre 10 mm ont été polies intérieurement, ce qui n'était pas le cas pour les exécutions précédentes. Cette modification améliore sensiblement la stabilité du compteur et le seuil d'apparition occasionnelle de trains de décharges est repoussé 50 volts au-delà de la fin du plateau (cf. § 12).

On a d'abord mesuré la pente du plateau avec irradiation homogène, un taux de comptage  $N$  égal à 35 impulsions/sec et les rapports  $R_1 = 210$  et  $R_2 = 440$ . On a obtenu une pente de  $0,67 \pm 0,2\%$  sur 160 volts, en bon accord avec la valeur correspondante de la figure 12.

Nous avons ensuite mesuré avec les mêmes taux et rapports  $R_1$ , mais avec irradiation concentrée, et obtenu une pente de  $0,24 \pm 0,14\%$  sur 160 volts. Les courbes de comptage qui correspondent à ces deux mesures sont représentées dans la figure 13.

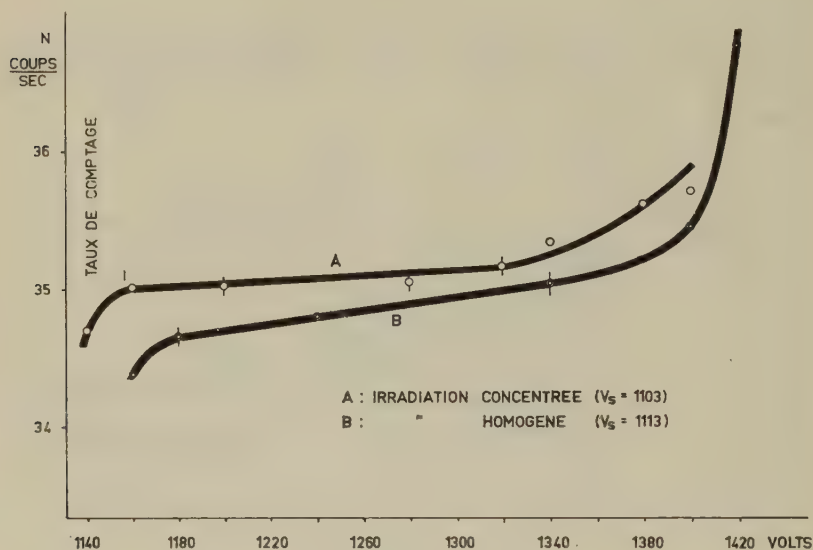


Fig. 13

Compteur V/2

$D = 104$  mm;  $a = 0,18$  mm;  $c_1 = 10$  mm;  $c_2 = 3$  mm;  $d = -5$  mm;  $e =$  Plateaux types

La comparaison des deux mesures montre que dans le cas où l'irradiation est homogène la pente provient, pour une bonne part encore, d'effets aux bouts.

A la précision des mesures près, les courbes des plateaux sont rectilignes. Il est caractéristique que le plateau commence pour une surtension de 60 volts.

Nous avons encore mesuré avec irradiation concentrée la pente du plateau pour un taux de 75 impulsions/sec. La pente a été trouvée égale à  $0,43 \pm 0,15\%$  sur 120 volts. Cette augmentation est due, comme nous allons voir, aux effets du temps mort. Ce dernier a été mesuré par la méthode oscillographique. Les valeurs mesurées sont reportées dans la figure 14.

Nous avons calculé les pertes de comptage dues au temps mort et la pente du plateau due à sa variation. Nous n'avons pas dû tenir compte



du fait que le temps mort varie avec le taux de comptage, cet effet n'intervenant que pour des taux beaucoup plus grands que ceux que nous avons considérés. Soit  $N_x$  la fréquence moyenne des impulsions que l'on mesure

MICROSEC.

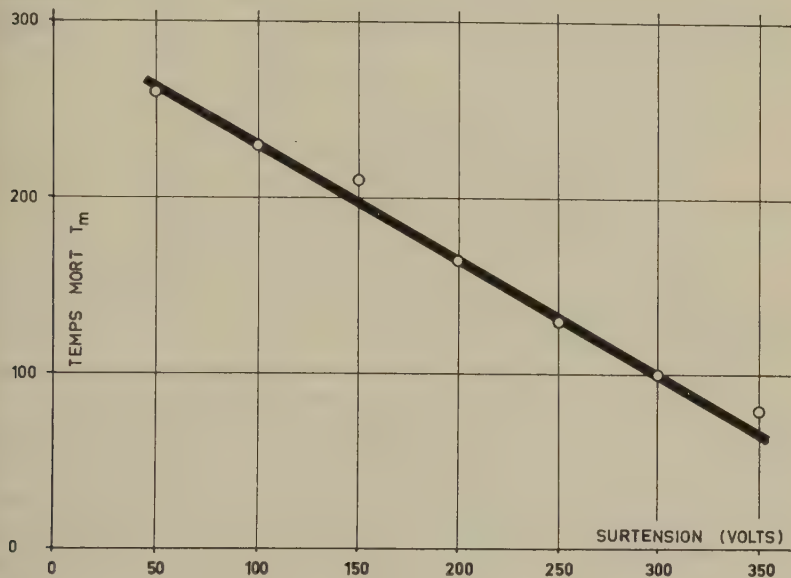


Fig. 14

Compteur V/2. Temps mort  $T_m$  en fonction de la surtension

réellement avec la surtension  $V - V_s = +x$  volts, et  $N_0$  la fréquence que l'on aurait observée si l'on avait  $T_m = 0$ . On a

$$N_x = \frac{N_0}{1 + T_m N_0}.$$

La pente du plateau est calculée entre les surtensions de 100 et 200 volts, avec les temps morts respectifs de 230 et 170  $\mu$ sec. Les résultats sont exposés dans le tableau II, page 39.

Si pour des taux de comptage correspondants, on compare les pentes mesurées avec irradiation concentrée avec les pentes calculées résultant de la seule variation du temps mort, on constate qu'aux erreurs près, elles sont égales. La variation du temps mort constitue une limite à l'amélioration de la pente du plateau par le seul ajustement des grandeurs géométriques.

### 16. Compteur V 3

Caractéristiques:  $D = 116$  mm;  $a = 0,18$  mm;  $c_1 = 16$  mm;  $c_2 = 3$  mm;  $d = -5$  mm;  $e = -2$  mm.  $R_{10}^1 = 123$ .  $R_{10}^2 = 450$ .  $R_1 = 120$ .  $R_2 = 430$ . Irradiation homogène.

Le compteur se différencie principalement du précédent par une électrode extérieure plus grande. On constate d'une part une amélioration de la longueur du plateau et du palier, d'autre part une légère détérioration de la pente du plateau.

On a mesuré les valeurs suivantes: Seuil: 1155 volts.

$$K_1 = 162$$

$$R_1 > K_1: L = 615 \text{ volts}$$

$$R_1 = R_{10}^1: L = 540 \text{ volts.}$$

$$\text{Pente: } -0,73 \pm 0,18\% \text{ sur 140 volts de 1300 à 1440 volts.}$$

$$1,39 \pm 0,18\% \text{ sur 300 volts de 1220 à 1520 volts.}$$

Si l'on accepte donc cette légère détérioration de la pente, on obtient un fonctionnement encore plus sûr.

### 17. Reproductibilité des caractéristiques

Nous avons déjà mentionné au paragraphe 3 la difficulté que représente en général le manque de reproductibilité des caractéristiques. Si l'on tient compte du fait que, pour un compteur bien dégazé, la pente provient presque exclusivement des effets aux extrémités, on comprend l'influence du mode d'irradiation. Il n'est souvent pas pris garde à reproduire cette condition lors de comparaisons. On trouvera ici l'explication d'une bonne partie des contradictions et désaccords reportés dans la littérature concernant les caractéristiques qui peuvent être obtenues en employant des mélanges gazeux particuliers, caractéristiques mesurées avec des compteurs dont les paramètres de construction ne sont pas explicitement donnés et dans des conditions d'irradiation non spécifiées.

Si l'on prend les précautions indiquées au paragraphe 3, non seulement l'influence des impuretés peut être rendue négligeable, mais encore la stabilité du compteur dans le temps devient très bonne: mise à part une baisse de la tension de seuil  $V_0$  rapide pendant les premières heures qui suivent le remplissage, puis très lente (exemple: 30 volts entre le 1<sup>er</sup> et le 3<sup>e</sup> jour; 10 volts entre le 3<sup>e</sup> et le 13<sup>e</sup>) qui est due à l'adsorption de l'alcool, on n'a pu remarquer aucune variation de la pente en fonction du temps, lorsque le compteur n'était pas utilisé.

### 18. Conclusion

Toutes les mesures ont été faites avec un mélange de gaz à la pression totale de 100 Torr. et une pression partielle d'alcool qui se stabilise à

10–12 Torr. Nos résultats ne sont valables que sous ces conditions. Il faut cependant remarquer que les caractéristiques ne dépendent que peu ou pas de ces pressions dans certaines limites.

Les compteurs que nous avons décrits ( $V/2$  et  $V/3$ ) présentent une amélioration remarquable de la pente du plateau par rapport aux compteurs à coque métallique habituels. Ils ont les caractéristiques prescrites au paragraphe 1, sauf en ce qui concerne la longueur.

Nous avons étudié l'influence de ce paramètre avec le compteur I (§ 4) pour le cas d'électrodes de garde simples; une étude sera faite pour un compteur à électrodes doubles, dont les résultats seront publiés ultérieurement. L'essai décrit au paragraphe 6 montre que l'adaptation d'une fenêtre, rendue conductrice, ne modifie pas les caractéristiques.

Nous avons vu qu'il existe une limite à la pente du plateau, due à la variation du temps mort en fonction de la surtension. Nous avons atteint cette limite dans les mesures avec irradiation concentrée. Pour une irradiation homogène la différence n'est plus très grande. La limite due au temps mort n'est cependant pas un obstacle insurmontable. D'une part on peut construire un plateau corrigé en calculant les pertes à ajouter aux valeurs mesurées; avec irradiation concentrée on obtient une pente corrigée nulle, signifiant que l'efficacité du compteur est constante et probablement 100% pour les électrons ayant pénétré dans le volume sensible. D'autre part il est possible de diminuer ou de rendre constant le temps mort à l'aide de circuits électroniques externes.

La réalisation d'un compteur à pente corrigée nulle prouve, en résumé, que la pente du plateau dépend des 4 facteurs suivants:

1° de la pureté du mélange gazeux. Une pureté suffisante peut être atteinte et conservée par une technique du vide simple.

2° du diamètre de l'anode. Le diamètre optimum pour les mélanges argon-alcool est bien déterminé.

3° des effets aux extrémités qui fournissent la majeure contribution dans les constructions habituelles.

4° de la variation du temps mort dont il est possible de se rendre maître.

La mise à disposition de moyens matériels par l'Office fédéral de l'industrie, des arts et métiers et du travail et par le Fonds national suisse de la recherche scientifique a rendu possible la réalisation de ce travail. Nos remerciements vont aux responsables de ces institutions.

### Bibliographie

- <sup>1)</sup> H. WILD und O. HUBER, *Helv. Phys. Acta* **30**, 3 (1957).
- <sup>2)</sup> R. MEUNIER, M. BONPAS et J. P. LEGRAND, *J. Physique Rad.* **14**, 630 (1953).
- <sup>3)</sup> M. CHAUDHRI and A. G. FENTON, *Proc. Phys. Soc.* **60**, 183 (1948).

- <sup>4)</sup> J. L. PUTMAN, *Proc. Phys. Soc.* *61*, 312 (1948).
- <sup>5)</sup> A. G. FENTON and E. W. FULLER, *Proc. Phys. Soc.* *62*, 32 (1949).
- <sup>6)</sup> A. NAWIJN, *Het Gasontladings Mechanisme van den Geiger-Müller Teller* (Delft, Drukkerij Hoogland, 1943).
- <sup>7)</sup> D. H. WILKINSON, *Ionization Chambers and Counters* (Cambridge 1950).
- <sup>8)</sup> B. ROSSI and H. STAUB, *Ionization Chambers and Counters* (Mc. Graw-Hill, N. Y. 1949).
- <sup>9)</sup> C. P. SIKKEMA, *Nucl. Instr.* *1*, 148 (1957).
- <sup>10)</sup> A. L. COCKROFT and S. C. CURRAN, *Rev. Sci. Instr.* *22*, 37 (1951).
- <sup>11)</sup> S. A. KORFF and R. D. PRESENT, *Phys. Rev.* *65*, 274 (1944).
- <sup>12)</sup> C. G. MONTGOMERY and D. D. MONTGOMERY, *Phys. Rev.* *57*, 1030 (1940).



# Theoretische Überlegungen zur experimentellen Bestimmung der spontanen Photonenschwankungen

Mitteilung aus dem Institut für höhere Elektrotechnik  
der Eidgenössischen Technischen Hochschule, Zürich

von **G. A. Spescha** und **M. J. O. Strutt**

(15. VIII. 1959)

*Zusammenfassung.* 1912 stellten A. EINSTEIN und H. A. LORENTZ Formeln auf über die spontanen Schwankungen der Hohlraumstrahlung. Im Grenzfall  $h\nu/kT \ll 1$  beschreiben diese Formeln die Interferenzschwankungen der Strahlung und sind experimentell schon häufig bestätigt worden. Über den Grenzfall, wo  $h\nu/kT \gg 1$  ist und die Schwankungen als durch die Statistik der unabhängigen Quanten bedingt aufgefasst werden können, sind noch keine experimentellen Untersuchungen bekannt. In der vorliegenden Arbeit wird ein Weg aufgezeigt, wie mit einem geeigneten Photonenempfänger die Schwankungen im Gebiet  $h\nu/kT \gg 1$  gemessen werden können. Zu diesem Zweck werden die Schwankungen nach Fourier zerlegt, und man beschränkt sich darauf, den Zusammenhang zwischen den Schwankungen der auf den Photonenempfänger auftreffenden Strahlung und den Schwankungen des Ausgangssignales innerhalb eines gewählten Frequenzintervalles zu ermitteln. Die Quantenausbeute spielt dabei eine wesentliche Rolle.

In einer späteren Arbeit wird gezeigt werden, dass das in dieser Betrachtung gewählte Modell eines Photonenempfängers unter gewissen Bedingungen realisiert werden kann. Es werden Messungen der Photonenschwankungen beschrieben werden.

## 1. Spontane Schwankungen der Hohlraumstrahlung

Im Jahre 1912 wurden von A. EINSTEIN und H. A. LORENTZ Formeln abgeleitet für die spontanen Schwankungen der Hohlraumstrahlung<sup>1) 2)</sup>. Spätere Veröffentlichungen haben die von den beiden genannten Autoren erhaltenen Formeln bestätigt<sup>3) 4) 5)</sup>.

Die mittlere Energie  $\overline{W}_\nu$  [Joule] in einem Hohlraumvolumen  $V$  [m<sup>3</sup>] im Frequenzintervall zwischen  $\nu$  und  $\nu + d\nu$  beträgt bei der absoluten Temperatur  $T$  nach M. PLANCK:

$$\overline{W}_\nu = V \frac{8\pi h \nu^3 d\nu}{c^3} [\exp(h\nu/kT) - 1]^{-1}. \quad (1)$$

Hier ist  $h$  die Plancksche,  $k$  die Boltzmannsche Konstante ( $6,62 \cdot 10^{-34} \text{Ws}^2/\text{m}^2$ ,  $1,38 \cdot 10^{-23} \text{Ws/Gradabs.}$ ) und  $c$  die Lichtgeschwindigkeit ( $3,00 \cdot 10^8 \text{ m/s}$ ). Dieser Mittelwert gilt entweder bei Mittelung in einem Hohl-

raum über eine Zeit, welche sehr lang ist verglichen mit  $1/d\nu$ , oder bei Mittelung über ein Ensemble von vielen gleichbeschaffenen Hohlräumen.

Die Energie  $W_\nu$  weist spontane Schwankungen

$$\Delta W_\nu = W_\nu - \bar{W}_\nu$$

gegenüber dem Mittelwert auf. Für den Mittelwert (im obigen Sinne) des Quadrates von  $\Delta W_\nu$  ergibt sich nach EINSTEIN<sup>1)</sup> und LORENTZ<sup>2)</sup> die Formel:

$$(\overline{\Delta W_\nu})^2 = \bar{W}_\nu h\nu + \frac{(\bar{W}_\nu)^2 c^3}{8\pi\nu^2 d\nu V}. \quad (2)$$

Führen wir für  $\bar{W}_\nu$  den Wert aus Gleichung (1) ein, so entsteht

$$\begin{aligned} (\overline{\Delta W_\nu})^2 &= \bar{W}_\nu h\nu \frac{\exp(h\nu/kT)}{\exp(h\nu/kT) - 1} \\ &= \bar{W}_\nu h\nu \cdot \mu, \end{aligned} \quad (3)$$

wo die Funktion  $\mu$  von  $x = h\nu/kT$  die Form

$$\mu = \frac{\exp(x)}{\exp(x) - 1} \quad (4)$$

hat.  $\mu$  wird auch Entartungsfaktor genannt.

Zählt man die Anzahl Photonen mit der Energie zwischen  $h\nu$  und  $h(\nu + d\nu)$  in vielen gleichbeschaffenen Hohlräumen, oder in demselben Hohlraum in vielen beliebigen Zeitpunkten und bezeichnet die Anzahl mit  $n$ , so gilt für die mittlere quadratische Abweichung  $\Delta n$ :

$$(\overline{\Delta n})^2 = \mu \bar{n}, \quad (5)$$

wo  $\mu$  auch gemäss Gleichung (4) definiert ist. Vgl. <sup>6)</sup> <sup>7)</sup> über Bose-Statistik.

Bei den Messungen der spontanen Photonenschwankungen werden nicht die Schwankungen der in einem Hohlraum befindlichen Zahl von Photonen bestimmt. Vielmehr handelt es sich um die Bestimmung der pro Zeiteinheit durch eine gegebene Fläche hindurchtretende Zahl von Photonen. Wenn wir den Mittelwert dieser Zahl  $n$  über viele gleiche Zeitintervalle oder über viele gleiche Flächen im gleichen Zeitintervall mit  $\bar{n}$  bezeichnen und die Schwankung mit  $\Delta n$ , so gilt wieder

$$\frac{(\overline{\Delta n})^2}{\bar{n}} = \mu,$$

$\mu$  gemäss Gleichung (4). Für die mittlere pro Sekunde durch die relativ zu den Hohlraumdimensionen kleine Fläche  $A$  strömende mittlere Energie  $\bar{W}_{\nu s}$  findet man

$$\bar{W}_{\nu s} = \bar{W}_\nu \frac{cA}{4V}. \quad (6)$$

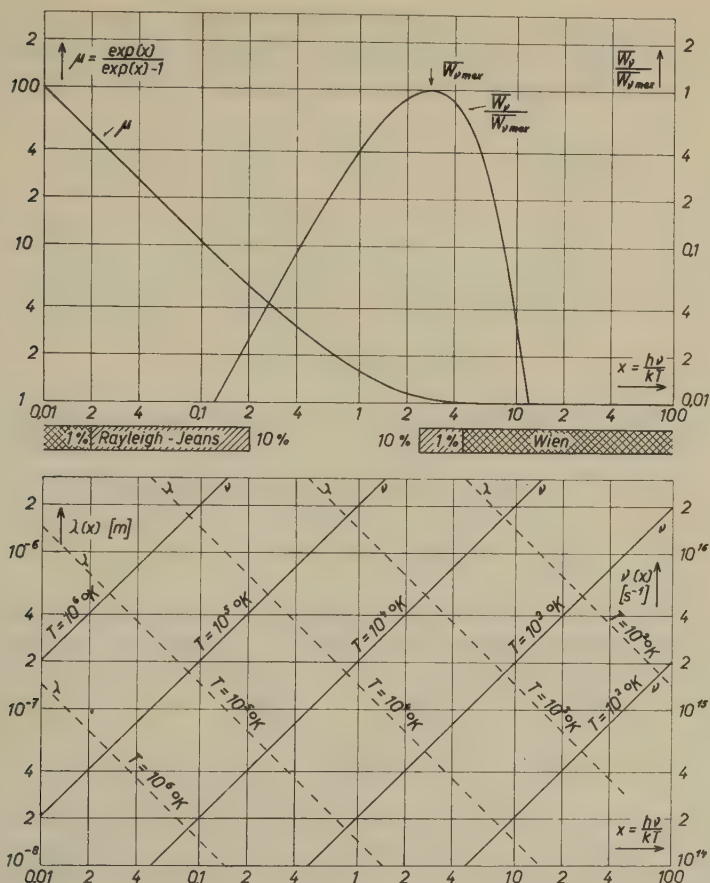


Fig. 1

Oben: Relative spektrale Energieverteilung nach M. PLANCK und der die Schwankungen kennzeichnende Faktor  $\mu$  als Funktion von  $x = h\nu/kT$ .

Mitte: Die Gebiete, innerhalb welcher das Rayleigh-Jeanssche oder das Wiensche Strahlungsgesetz gültig sind mit einem maximalen Fehler von 10% bzw. 1%, sind schraffiert.

Unten: Wellenlänge und Strahlungsfrequenz als Funktion von  $x$  bei verschiedenen Temperaturen als Parameter. Alle Zehnerpotenzen der Temperaturen sind um eins zu erhöhen.

## 2. Fourierzerlegung der spontanen Schwankungen

Der Photonenstrahl, welcher den Hohlraum verlassen hat, treffe auf die Oberfläche eines Detektors auf und werde dort absorbiert. Die absorbierte Energie lässt sich als Funktion der Zeit gemäss Fig. 2 darstellen. Diese Darstellung dient nur zum Zwecke der Fourierzerlegung und soll keine Aussagen über die Struktur eines Photons beinhalten.

Die momentane Leistung ergibt sich durch Differentiation der Energie nach der Zeit. Die Absorptionszeit für ein Photon sei mit  $\tau$  bezeichnet. Wenn man den Begriff der Länge  $l$  eines Photons einführt, so ergibt sich:

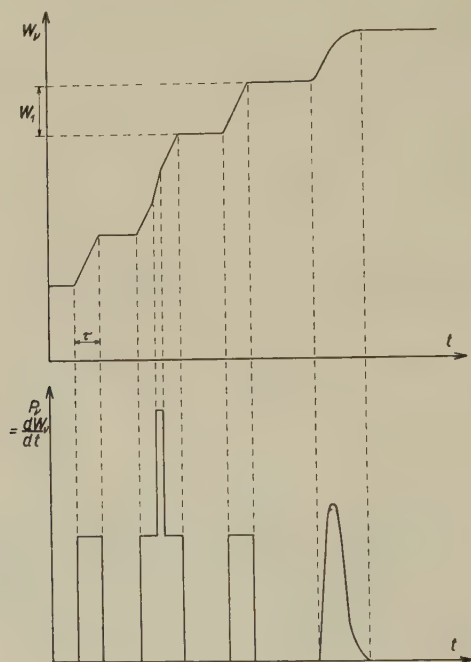


Fig. 2

Oben: Von einem Detektor mit der Temperatur 0 absorbierte Strahlungsenergie als Funktion der Zeit.

Unten: Momentane Leistung.

$\tau = l/c$ . In den vier links dargestellten Absorptionsvorgängen ist Energie als gleichmässig über die Länge des Photons verteilt angenommen, in dem rechts gezeichneten Fall als willkürlich verteilt. Immer muss gelten

$$\int_t^{t+\tau} P \, dt = W_1 = h\nu, \quad (7)$$

wenn  $P$  die momentane Leistung, von dem Auftreffen eines Photons herrührend, ist.

Um die Fourierdarstellung der Funktion  $P(t)$  zu gewinnen, geht man analog vor wie bei der Berechnung des Rauschstromes einer gesättigten Hochvakuumdiode; siehe W. SCHOTTKY<sup>8)</sup> und <sup>9)</sup>, <sup>10)</sup>, <sup>11)</sup>. Zuerst berech-



net man die Fourierdarstellung der Funktion  $P(t)$ , welche das Auftreffen eines einzelnen Photons darstellt. Denkt man sich das Ereignis in Zeitintervallen  $T_0$  wiederholt und macht man den Ansatz

$$P(t) = a_0 + \sum_k a_k \cos k \frac{2\pi}{T_0} t + \sum_k b_k \sin k \frac{2\pi}{T_0} t, \quad (8)$$

so bestimmen sich die Koeffizienten zu

$$a_k = \frac{2}{T_0} h\nu \cos \omega t_0, \quad \omega = k \frac{2\pi}{T_0} = 2\pi f, \quad (9)$$

und

$$b_k = \frac{2}{T_0} h\nu \sin \omega t_0, \quad (10)$$

wenn das Photon zur Zeit  $t_0$  die Detektoroberfläche erreicht, und sofern  $f \ll 1/\tau$ .

Die Amplitude mit der Frequenz  $f$  beträgt somit

$$c_k = \sqrt{a_k^2 + b_k^2} = \frac{2}{T_0} h\nu. \quad (11)$$

Jeder Ordnungszahl  $k$  entspricht eine Frequenz  $f = k/T_0$ . Auf den Frequenzbereich  $\Delta f$  entfallen daher  $\Delta f \cdot T_0$  aufeinanderfolgende  $k$ -Werte. Daher ergibt sich für die Summe der Amplitudenquadrate im Frequenzbereich  $\Delta f$ :

$$c_f^2 = \frac{4}{T_0} (h\nu)^2 \Delta f. \quad (12)$$

Unter der obigen Beschränkung in bezug auf  $f$  sind diese Amplituden von  $f$  unabhängig (weisses Spektrum). Das Quadrat des Effektivwertes der Leistung beim Auftreffen eines einzelnen Photons beträgt

$$\overline{p_1^2} = \frac{2}{T_0} (h\nu)^2 \Delta f. \quad (13)$$

Wenn man annimmt, dass die einzelnen Ereignisse voneinander unabhängig sind, d. h.

$$\mu = 1, \quad \text{bzw.} \quad (\Delta n)^2 = \overline{n},$$

wo  $n$  die Anzahl der im Zeitintervall  $T_0$  auftreffenden Photonen ist, so wird das Quadrat des Effektivwertes der Leistung, welche durch das Auftreffen des gesamten Photonenstrahles entsteht, in folgender Weise durch Summation gebildet<sup>10)</sup>:

$$\overline{p^2} = \sum \overline{p_1^2} = \sum_n 2 \frac{(h\nu)^2}{T_0} \Delta f = \overline{n} \cdot 2 \frac{(h\nu)^2}{T_0} \Delta f. \quad (14)$$

Bei Einführen des Wertes  $\overline{P}$  für die mittlere Leistung

$$\overline{P} = \frac{\overline{n}}{T_0} \cdot h\nu \quad (15)$$

erhält man für den quadratischen Mittelwert der Schwankungsleistung im Frequenzintervall  $\Delta f$  (und solange  $f \ll 1/\tau$ ):

$$\overline{p^2} = 2 h\nu \overline{P} \Delta f. \quad (16)$$

Dieses Leistungsquadrat ist proportional zum mittleren Schwankungsquadrat  $(\Delta n)^2$ . Wenn im allgemeinen Fall

$$(\Delta n)^2 = \mu \overline{n},$$

so muss demzufolge auch

$$\overline{p^2} = 2 h\nu \mu \overline{P} \Delta f \quad (17)$$

sein. Das mittlere Schwankungsleistungsquadrat im Strahlungsfrequenzband von  $\nu_1$  bis  $\nu_2$  erhält man durch Integration von Gleichung (17) über  $\nu$  von  $\nu_1$  bis  $\nu_2$ .

### 3. Grenzfall nach Lord Rayleigh

Im Gebiet  $x \ll 1$  geht das Plancksche Strahlungsgesetz in das Rayleighsche Gesetz über. Der Faktor  $\mu$  wird gross gegen 1. In Gleichung (2) wird das zweite Glied, welches nach H. A. LORENTZ<sup>2)</sup> die Interferenzerscheinungen der elektromagnetischen Wellen beschreibt, viel grösser als das erste Glied.

#### 3.1. Tiefe und mittlere Temperaturen

Bei Temperaturen bis zu einigen 1000° K tritt dieser Grenzfall erst auf für Wellenlängen, die über dem sichtbaren Gebiet liegen. Siehe Fig. 1. Das Gebiet sehr grosser Wellenlängen (Radiowellen) ist der Messtechnik relativ leicht zugänglich bei Verwendung von Antennen und empfindlichen Anzeigegegeräten. Die Antenne selbst ist kein eigentlicher Strahlungsdetektor. Erst die Verbindung der Antenne mit einem (am besten quadratisch) gleichrichtenden Anzeigeinstrument ist ein Strahlungsdetektor.

Aus den Gleichungen (1), (3) und (6) und der Bedingung  $x \ll 1$  lassen sich die Schwankungen  $\Delta W_{\Delta\nu s}$  der von einer Umgebung mit der Temperatur  $T$  auf die Antennenfläche  $A$  im Strahlungsfrequenzintervall  $\Delta\nu$  pro  $s$  auftreffenden Strahlungsenergie berechnen. Man erhält:

$$\overline{(\Delta W_{\Delta\nu s})^2} = \frac{2 \pi \nu^2 \Delta\nu}{c^2} (k T)^2 A. \quad (18)$$

Mit dem Ausdruck

$$A = \frac{\lambda^2}{2\pi} \quad (19)$$

für die äquivalente mittlere Empfangsfläche einer Antenne <sup>12)13)14)</sup>, ergibt sich

$$(\overline{\Delta W_{\Delta\nu}})^2 = k^2 T^2 \Delta\nu. \quad (20)$$

Nach <sup>13)</sup> tritt infolge dieser Schwankungsleistung eine normal verteilte Rauschspannung am Antennenausgang auf. Die verfügbare mittlere Rauschleistung am Antennenausgang kann aus Gleichung (20) berechnet werden:

$$\overline{P_v} = k T \Delta\nu. \quad (21)$$

Dasselbe Ergebnis erhält man auch ohne Verwendung des Schwankungsgesetzes durch Berechnung der mittleren Leistung, welche nach dem Rayleighschen Strahlungsgesetz der Antenne zugeführt wird <sup>15)16)</sup>. Gleichung (21) sagt aus, dass die Antenne gleich rauscht, wie wenn ihr Strahlungswiderstand ein ohmscher Widerstand wäre, welcher die Temperatur der Umgebung aufweist. Da  $\overline{P_v} \sim T$  ist, lassen sich auf diese Weise Temperaturmessungen durchführen (Radioteleskope).

### 3.2. Hohe Temperaturen

Bei sehr hohen Temperaturen tritt der Grenzfall, wo  $x \ll 1$ , schon im Gebiet der sichtbaren Strahlung auf. Siehe Fig. 1.

Im folgenden wird gezeigt werden, wie im sichtbaren und im nahen infraroten Gebiet die Strahlungsschwankungen gemessen werden können mit eigentlichen Photonenempfängern. Durch Messung von  $\overline{p^2}$  und  $\overline{P}$  kann dann nach Gleichung (17) leicht der Faktor  $\mu$  bestimmt werden. Weil unter der Bedingung, dass  $x \ll 1$ ,  $\mu$  eine Funktion der Temperatur ist ( $\mu \approx kT/h\nu$ ), so muss sich durch Messung von  $\mu$  die Temperatur der Strahlungsquelle bestimmen lassen. Voraussetzung dafür ist, dass die Strahlungsquelle so stabil ist, dass die Schwankungen im Messfrequenzintervall  $\Delta f$  im wesentlichen die von A. EINSTEIN beschriebenen sind. Es ist denkbar, dass diese Messmethode bei Temperaturmessungen an heissen Plasmen wertvolle Dienste leistet. Das würde heissen, dass man die Temperatur eines Körpers definiert durch die Grösse der relativen Schwankungen der von demselben ausgesandten Strahlung.

Bei dem raschen Fortschritt im Bau von langwelligen Infrarot-Detektoren (Photonenempfänger) ist es nicht ausgeschlossen, diese Messmethode bald auch für Strahler mit Temperaturen bis etwa auf  $10^3$  °K hinunter anzuwenden.

#### 4. Grenzfall der Photonenschwankungen

Wenn  $x \gg 1$  ist, so geht das Plancksche Strahlungsgesetz in das Gesetz von W. Wien über. Bezüglich der Schwankungen gilt

$$\mu = 1$$

und damit

$$(\Delta W_\nu)^2 = \hbar \nu \overline{W}_\nu \quad (22)$$

bzw.

$$(\Delta n)^2 = \overline{n}. \quad (23)$$

Nach A. EINSTEIN und H. A. LORENTZ ist die experimentelle Bestätigung dieses Grenzfalles, Gleichung (22), ein Beweis für die Quantenstruktur des Lichtes.

Aus Fig. 1 ist ersichtlich, dass im Gebiet der sichtbaren und kürzeren Wellen, die von einem Strahler mit einer Temperatur unter etwa  $10^3$  °K herrührt, die Bedingung  $x \gg 1$  erfüllt ist. Dieser Grenzfall soll mit einem empfindlichen Detektor untersucht werden.

#### 5. Theorie eines Photonenempfängers

##### 5.1. Idealer Photonenempfänger

Um die spontanen Photonenschwankungen experimentell erfassen zu können, ist ein Strahlungsdetektor notwendig, bei welchem das Ausgangssignal (Anzeige) möglichst eng mit dem Eingangssignal (Photonenstrom) zusammenhängt. Es sind zwei geeignete Arten von Detektoren denkbar:

1. Der Detektor ist ein Leistungsdetektor, d. h. das Ausgangssignal ist proportional zur eingestrahnten Leistung. Damit können die in Gleichung (17) nach FOURIER dargestellten Leistungsschwankungen in einem Frequenzintervall  $\Delta f$  gemessen werden.

2. Der Detektor zählt die einfallenden Quanten. Macht man häufige Zählungen der in lauter gleichen Zeitintervallen auf den Detektor auftreffenden Quanten und bezeichnet den jeweiligen Wert mit  $n$ , so führt dies auf eine Kontrolle der Gleichung (5).

Diese beiden Detektorarten unterscheiden sich nicht wesentlich voneinander. Wenn man nur ein schmales Strahlungsfrequenzband  $\Delta \nu$  im Vergleich zu  $\nu$  betrachtet, so haben alle Photonen nahezu die gleiche Energie  $\hbar \nu$ . Hier besteht der Unterschied nur in der Art der Auswertung des Ausgangssignals (Zählung der Ereignisse oder Messung einer Amplitude in einem Frequenzintervall  $\Delta f$ ).

Wir beschränken uns hier auf die Darstellung eines Detektors der ersten Art. Wird der Anzeigewert mit  $I$  bezeichnet, so ist

$$I = a P. \quad (24)$$



Wir setzen voraus, dass  $a$  konstant ist, auch kurzzeitig. Ferner nehmen wir an, dass das Ausgangssignal des Detektors ein elektrischer Strom sei. Weil der elektrische Strom auch von diskreten Partikeln getragen wird, treffen wir die Annahme: Pro auftreffendes Photon soll sogleich ein Elektron das Anzeigeeinstrument passieren. Bei einer festen Strahlungsfrequenz schreibt sich dann Gleichung (24) zu

$$I = P \cdot \frac{e}{h\nu}. \quad (25)$$

Hier ist  $e$  der Betrag der elektrischen Elementarladung ( $1,6 \cdot 10^{-19}$  As). Aus Gleichung (17) und Gleichung (25) lässt sich eine Formel für das Rauschstromquadrat des trägheitslosen Detektors ableiten:

$$\frac{\overline{i^2}}{I} = 2 e \mu \Delta f. \quad (26)$$

Mit den Gleichungen (25) und (26) ist die Charakteristik des angenommenen idealen Photonendetektors bei der Frequenz  $\nu$  gegeben.

### 5.2. Nichtidealer Photonenempfänger

Es dürfte nicht möglich sein, den beschriebenen idealen Detektor herzustellen, schon infolge von Reflexionen. Wir nehmen an, dass der an sich ideale Detektor eine Oberfläche aufweist, welche die auftreffende Strahlung teilweise reflektiert. Der Bruchteil  $\alpha$  der Gesamtstrahlung  $P_0$  werde dem idealen Detektor zugeführt und mit  $P_a$  (absorbierte Leistung) bezeichnet, der Teil  $1 - \alpha$  werde an der Oberfläche reflektiert, mit  $P_r$  bezeichnet.  $\alpha$  ist daher gleich dem Quantenwirkungsgrad, wenn wir denselben definieren als das Verhältnis der Anzahl der pro Zeiteinheit das Anzeigeeinstrument passierenden Elektronen zur Anzahl der pro Zeiteinheit auf den Detektor auftreffenden Photonen. Die Oberfläche sei homogen, z. B. ein fehlerfreies Kristallgitter, so dass die Annahme gerechtfertigt ist, dass alle Photonen einer gegebenen Strahlungsfrequenz, die in einem gegebenen Winkel auftreffen, mit derselben Wahrscheinlichkeit absorbiert werden.

Damit sind gegeben: Die Schwankungen der auftreffenden Strahlung, der Reflexionsmechanismus und der ideale Detektor. Gesucht sind die Schwankungen der absorbierten Strahlung, bzw. die Schwankungen des Ausgangssignales. Das Problem ist analog dem Problem der Berechnung des Rauschstromes einer Mehrgitterröhre, wo aus dem gegebenen Rauschstrom der Kathode der Rauschstrom einer positiven Elektrode, auf welche der Anteil  $\alpha$  des Kathodenstromes entfällt, berechnet werden kann<sup>11, S. 262</sup>).

Die Statistik des gesuchten Vorganges lässt sich wie folgt darstellen:

In einem Gefäss befinden sich sehr viele rote und weisse Kugeln. Der Bruchteil  $\alpha$  aller Kugeln sei rot, der Bruchteil  $(1 - \alpha)$  sei weiss. Die Wahrscheinlichkeit, in einer Ziehung eine rote zu ziehen, ist daher gleich  $\alpha$  (Bernoulli-Experiment). Wir ziehen nun in einem Zeitintervall  $T_0$  jeweils  $n$  Kugeln; davon seien  $A$  rot und  $B$  weiss. Es ist  $A + B = n$ . Nach den Gesetzen der Binomialverteilung gilt für die Abweichung vom Mittelwert bei Mittelung über sehr viele Ziehungen

$$\overline{(A - \bar{A})^2} = \overline{(B - \bar{B})^2} = n \alpha (1 - \alpha). \quad (27)$$

Identifiziert man die absorbierten Photonen mit den roten Kugeln und die reflektierten mit den weissen, so erhält man für die Energieschwankungen im Zeitintervall  $T_0$

$$\overline{\left(A \frac{h\nu}{T_0} - \bar{A} \frac{h\nu}{T_0}\right)^2} = \left(\frac{h\nu}{T_0}\right)^2 n \alpha (1 - \alpha) \quad (28)$$

Bezeichnet man mit  $P_0$  die gesamte, mit  $P_a$  die absorbierte und mit  $P_r$  die reflektierte Leistung, so erhält man für die Leistungsschwankungen, wobei die auftreffende Energie im Zeitintervall  $T_0$  zur Leistungsbestimmung gebraucht wird:

$$\overline{(P_a - \bar{P}_a)^2} = \left(\frac{h\nu}{T_0}\right)^2 n \alpha (1 - \alpha). \quad (29)$$

In der Fourierdarstellung hat man zu setzen (vgl. Abschnitt 2):

$$\frac{1}{T_0} = 2 \Delta f, \quad (30)$$

$$\overline{p_{av}^2} = \overline{(P_a - \bar{P}_a)^2}, \quad (31)$$

wo  $p_a$  der Effektivwert der Schwankungsleistung ist.

Mit

$$P_a = n \frac{h\nu}{T_0} \alpha = \alpha \bar{P}_0 \quad (32)$$

schreibt sich das Leistungsschwankungsquadrat  $\overline{p_{av}^2}$  des absorbierten Photonenstrahles wie folgt:

$$\overline{p_{av}^2} = 2 h\nu \bar{P}_a (1 - \alpha) \Delta f. \quad (33)$$

Zu diesen von der Verteilungsstatistik herrührenden Schwankungen addieren sich die Schwankungen des ursprünglichen Photonenstrahles  $p_0$  im Anteil  $\alpha$ , nämlich:

$$\overline{p_{ao}^2} = \alpha^2 \cdot \overline{p_0^2} = \alpha^2 2 h\nu \mu \bar{P}_0 \Delta f \quad (34)$$

$$\overline{p_{ac}^2} = 2 h\nu \mu \bar{P}_a \alpha \Delta f \quad (35)$$

Die gesamte Schwankungsleistung des absorbierten Photonenstrahles erhält man durch Addition von  $\overline{p_{av}^2}$ , Gleichung (33) und  $\overline{p_{ao}^2}$ , Gleichung (35):

$$\overline{p_a^2} = 2 h \nu \overline{P_a} [1 + \alpha (\mu - 1)] \Delta f. \tag{36}$$

Bei Einführen eines Schwankungsfaktors  $\gamma$  für die absorbierte Strahlung, so dass

$$\overline{p_a^2} = 2 h \nu \gamma \overline{P_a} \Delta f, \tag{37}$$

beträgt

$$\gamma = 1 + \alpha (\mu - 1). \tag{38}$$

Weil der absorbierte Photonenstrahl im oben beschriebenen idealen Detektor in einen elektrischen Strom umgesetzt wird, so ist  $\gamma$  zugleich auch der Schwankungsfaktor des Photostromes, also

$$i^2 = 2 e I \gamma \Delta f. \tag{39}$$

In Fig. 3 ist  $\gamma$  als Funktion von  $\mu$  und  $\alpha$  dargestellt.

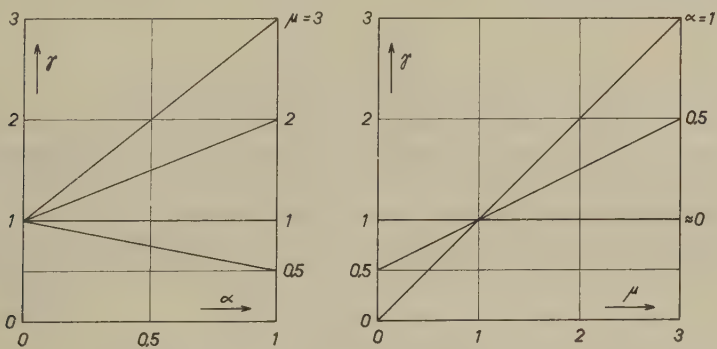


Fig. 3  
Links:  $\gamma$  als Funktion von  $\alpha$ ;  $\mu$  Parameter  
Rechts:  $\gamma$  als Funktion von  $\mu$ ;  $\alpha$  Parameter

Aus dieser Darstellung ist unmittelbar ersichtlich, dass der Quantenwirkungsgrad  $\alpha$  der Photodiode darüber entscheidet, wie genau man aus einem gemessenen Wert  $\gamma$  auf den Schwankungsfaktor  $\mu$  der auftretenden Strahlung schliessen kann.

Es kann nun sein, dass sich schon zwischen der Lampe und der Detektoroberfläche eine Schicht befindet, welche nur einen Teil der Strahlung passieren lässt. Ist diese Schicht sehr homogen, so dass auch hier die Annahme, dass jedes auftreffende Photon dieselbe Chance hat, durchgelassen zu werden, sinnvoll ist, so lässt sich das Problem gleich lösen wie

oben. Bezeichnet man die Transmissionswerte zweier aufeinanderfolgender Schichten mit  $\alpha_1$  und  $\alpha_2$  und den Quantenwirkungsgrad des beschriebenen Detektors mit  $\alpha_3$ , und beträgt der Schwankungsfaktor der ursprünglichen Strahlung  $\mu$ , so beträgt der Schwankungsfaktor nach der ersten Schicht ( $\alpha_1$ ):

$$\mu' = 1 + \alpha_1 (\mu - 1), \quad (40)$$

nach der zweiten Schicht ( $\alpha_2$ )

$$\mu'' = 1 + \alpha_2 (\mu' - 1), \quad (41)$$

und der Schwankungsfaktor des Detektor-Ausgangssignales

$$\gamma = 1 + \alpha_3 (\mu'' - 1) = 1 + \alpha_1 \cdot \alpha_2 \cdot \alpha_3 (\mu - 1). \quad (42)$$

Massgebend ist also der gesamte Wirkungsgrad, welcher sich zusammensetzt aus den Produkten der Wirkungsgrade sämtlicher Schichten zwischen Strahlungsquelle und idealem Quantendetektor. Es ist praktisch, alle Verluste beim Auslösen von Ladungsträgern im Detektor durch die vom Strahler emittierten Quanten zusammenzufassen, indem man alle  $\alpha$ -Werte multipliziert:

$$\alpha = \alpha_1 \cdot \alpha_2 \dots \alpha_n. \quad (43)$$

### 5.3. Photonenempfänger mit variablen Verlusten

Obige Betrachtungen gelten in einem schmalen Frequenzbereich  $\Delta\nu$ , so dass man  $\nu$  als konstant betrachten kann, und für einen konstanten Wert  $\alpha$ . Vergrössert man die Bandbreite  $\Delta\nu$ , so muss man im allgemeinen die Abhängigkeit der Grösse  $\alpha$  von  $\nu$  berücksichtigen.

Gegeben sei eine Quelle, welche in Richtung des Photodetektors die spezifische Leistung im Frequenzintervall  $d\nu$

$$\overline{P}(\nu)$$

emittiert. Der Schwankungsfaktor der Strahlung betrage

$$\mu(\nu),$$

der gesamte Wirkungsgrad gemäss Gleichung (43) betrage

$$\alpha(\nu).$$

Es ist günstig, die Spektralabhängigkeit von  $\overline{P}(\nu)$  durch die relative Funktion  $\varphi(\nu)$  auszudrücken, welche die spezifische Anzahl Quanten  $n$  pro  $s$  bei der Frequenz  $\nu$  darstellt, indem man setzt:

$$n(\nu) = n_0 \varphi(\nu) \quad (44)$$

Mittels der Funktion  $\varphi(\nu)$  kann dann  $P(\nu)$  geschrieben werden als

$$P(\nu) = \nu \cdot \varphi(\nu) \cdot B. \quad (45)$$



Von diesen Werten ausgehend erhält man für das spezifische mittlere Rauschstromquadrat am Detektorausgang gemäss Gleichung (38) und (39)

$$\overline{[i(\nu)]^2} = 2 e I(\nu) [1 + \alpha(\nu) (\mu(\nu) - 1)] \Delta f, \quad (46)$$

wobei

$$I(\nu) = \bar{P}(\nu) \cdot \frac{e}{h\nu} \alpha(\nu) = B \frac{e}{h} \cdot \varphi(\nu) \cdot \alpha(\nu). \quad (47)$$

Das gesamte Rauschstromquadrat beträgt

$$\begin{aligned} \overline{i^2} &= \int_0^\infty \overline{[i(\nu)]^2} d\nu = \\ &= 2 e B \frac{e}{h} \Delta f \int_0^\infty \varphi(\nu) \alpha(\nu) [1 + \alpha(\nu) (\mu(\nu) - 1)] d\nu. \end{aligned} \quad (48)$$

Der gesamte mittlere Ausgangsrauschstrom beträgt

$$I = \int_0^\infty I(\nu) d\nu = B \frac{e}{h} \int_0^\infty \varphi(\nu) \alpha(\nu) d\nu. \quad (49)$$

Aus den Gleichungen (48) und (49) ergibt sich

$$\overline{i^2} = 2 e I \Delta f \cdot \left[ 1 + \frac{\int_0^\infty \alpha(\nu)^2 \varphi(\nu) [\mu(\nu) - 1] d\nu}{\int_0^\infty \alpha(\nu) \varphi(\nu) d\nu} \right]. \quad (50)$$

Wenn man den Ausdruck in der eckigen Klammer wiederum als  $\gamma$  bezeichnet, und wenn man  $\mu(\nu)$  als Konstante betrachten kann, (immer im Fall  $h\nu/kT \gg 1$ ), so wird der Ausdruck für  $\gamma$ :

$$\gamma = 1 + \frac{\int_0^\infty \alpha^2(\nu) \varphi(\nu) d\nu}{\int_0^\infty \alpha(\nu) \varphi(\nu) d\nu} (\mu - 1). \quad (51)$$

Die Normierung der Funktion  $\varphi(\nu)$ , welche den relativen Verlauf der Quantenemissionsfunktion über  $\nu$  gibt, kann beliebig sein.

Der Vergleich mit Gleichung (38) zeigt, dass an der Stelle von  $\alpha$  ein Integralausdruck steht. Indem man

$$\alpha^* = \frac{\int_0^\infty \alpha^2(\nu) \varphi(\nu) d\nu}{\int_0^\infty \alpha(\nu) \varphi(\nu) d\nu} \quad (52)$$

setzt, erhält man statt Gleichung (38) den Ausdruck

$$\gamma = 1 + \overline{\alpha^*} (\mu - 1). \quad (53)$$

Wenn  $\alpha$  sowohl von der Frequenz  $\nu$  als auch vom Ort der Detektoroberfläche  $a$  abhängig ist, und auch die auftreffende Strahlungsleistung sowohl frequenzabhängig ist als auch örtlich verschieden über die einzelnen Flächenelemente, und wenn man diese Funktionen wie folgt ansetzt:

$$\alpha(\nu, a), \quad \varphi(\nu, a),$$

und wenn  $A$  die Summe aller Flächenelemente  $da$  ist, so schreibt sich der Ausdruck für  $\overline{\alpha^*}$  zu:

$$\overline{\alpha^*} = \frac{\int_0^\infty \int_0^A \alpha^2(\nu, a) \varphi(\nu, a) d\nu da}{\int_0^\infty \int_0^A \alpha(\nu, a) \varphi(\nu, a) d\nu da} \quad (54)$$

$\alpha^*$  lässt sich interpretieren als der gewogene Mittelwert von  $\alpha$ . Die einzelnen  $\alpha$ -Werte werden bewertet mit dem Stromanteil, welcher von dem zugehörigen Teildetektor ( $d\nu da$ ) herrührt. Ausführlicheres darüber siehe 17).

## 6. Möglichkeit der experimentellen Bestätigung

Wenn der oben beschriebene Photonenempfänger realisiert werden kann und die angestellten statistischen Betrachtungen über die Photonenabsorption der Wirklichkeit entsprechen, so ist damit der Zusammenhang zwischen den Schwankungen des Ausgangssignales, durch die Grösse  $\gamma$  beschrieben, und den Schwankungen des auftreffenden Photonenstrahles, durch die Grösse  $\mu$  beschrieben, festgelegt. Das heisst, dass sich aus der messbaren Grösse  $\gamma$  die Grösse  $\mu$  bestimmen lässt. Der Fehler von  $\mu$  bestimmt sich aus dem Messfehler  $\Delta\gamma$  gemäss Gleichung (38) wie folgt:

$$\Delta\mu = \frac{1}{\alpha} \Delta\gamma. \quad (55)$$

Entscheidend für die Messgenauigkeit ist der Wert von  $\alpha$ , wie auch aus Abbildung 3 ersichtlich ist.

Die mittels der Funktion  $\gamma(\mu)$  beschriebene Korrelation zwischen den Schwankungen der Strahlung und den Schwankungen des Ausgangssignales kann auf folgende Weise überprüft werden:

1. Man eliminiert die durch die Natur des Detektors bedingten Eigenschwankungen möglichst gut durch Auswahl eines geeigneten Detektors. Sein Dunkelsignal soll klein sein, und die vom Dunkelsignal herrührenden Schwankungen sollen von den gesamten Schwankungen separiert werden

können. Ferner soll das Ausgangssignal im Detektor keine zusätzlichen Schwankungen bewirken (z. B. Funkelrauschen in einem Halbleiterdetektor).

2. Man misst den Frequenzgang des Detektors. Die über den idealen Detektor getroffenen Annahmen sind nur berechtigt, wenn ein auftretender Photonenimpuls einen unverformten Ausgangsimpuls bewirkt. Wenn man sowohl das Eingangs- wie das Ausgangssignal nach FOURIER zerlegt, so heisst das, dass der Detektor in einem grossen Frequenzbereich frequenzunabhängig in bezug auf Betrag und Phase des Übertragungsmasses arbeiten muss. Wenn man die Schwankungen nur in einem Frequenzintervall  $f, f + \Delta f$  betrachtet, so genügt die Bedingung, dass sich der Detektor in diesem Frequenzgebiet noch nicht unterscheidet von seinem Verhalten bei der Frequenz  $f = 0$ .

3. Die Kontrollen unter 1. und 2. genügen, um das Rauschverhalten des idealen Detektors abzuklären. Um den Einfluss der Verluste ( $\alpha < 1$ ) experimentell zu erfassen, kann man wie folgt vorgehen: Man moduliert den Photonenstrahl mit einem Rauschsignal. Dadurch werden die von der Strahlungsquelle herrührenden Schwankungen, durch  $\mu_0$  beschrieben, vergrössert. Der von dem aufmodulierten Rauschsignal herrührende Schwankungsfaktor sei  $\mu_m$ . Somit beträgt  $\mu = \mu_0 + \mu_m$  und kann beliebig vergrössert werden. Indem man die zugehörigen Werte  $\gamma$  misst, lässt sich die Funktion  $\gamma(\mu)$  auf experimentelle Art bestimmen. Wenn diese Funktion gegeben ist, kann man durch Messung von  $\gamma(\mu)$  an der Stelle  $\mu_m = 0$  auf den Wert  $\mu_0$  schliessen.

Die obigen Arbeiten wurden durch mehrere Kredite des Schweizerischen Nationalfonds für wissenschaftliche Forschung ermöglicht. Hierfür sprechen die Autoren ihren besten Dank aus.

### Literaturverzeichnis

- 1) EINSTEIN, A., Vortrag am Congrès Solvay, 1912.
- 2) LORENTZ, H. A., Les théories statistiques en thermodynamique (Vorträge gehalten 1912). Teubner, Leipzig 1916.
- 3) EINSTEIN, A., Quantentheorie des einatomigen idealen Gases. Sitzungsberichte der Berliner Akademie, 1925, S. 3–14.
- 4) BORN, M., HEISENBERG, W. und JORDAN, P., Zur Quantenmechanik. Z. Physik, Bd. 35, 1926, S. 557–615.
- 5) BOTHE, W., Zur Statistik der Hohlraumstrahlung. Z. Physik, Bd. 41, 1927, S. 345–351.
- 6) LEWIS, W. B., Fluctuations in streams of thermal radiation. Proc. Phys. Soc., Vol. 59, p. 34–40, 1947.
- 7) ZEISE, H., Thermodynamik, 1. Bd., Hirzel, Leipzig 1944.
- 8) SCHOTTKY, W., Zur Berechnung und Beurteilung des Schroteffektes. Ann. Phys. Bd. 68, 1932, S. 157–176.
- 9) RICE, S. O., Mathematical analysis of random noise. Bell syst. techn. journ., Vol. 23, 1944, p. 282–332.

- <sup>10)</sup> ROTHE, H. und KLEEN, W., Elektronenröhren als Anfangsstufen-Verstärker. Akad. Verlagsgesellschaft, Leipzig 1948.
- <sup>11)</sup> STRUTT, M. J. O., Elektronenröhren. Springer, Berlin 1957.
- <sup>12)</sup> JONES, R. C., Performance of visible and infrared detectors. *Advances in Electronics*, Vol. 5, 1953, p. 1-96, Acad. Press, New York.
- <sup>13)</sup> FELLGETT, P. B., On the ultimate sensitivity and practical performance of radiation detectors. *Journ. opt. soc. America*, Vol. 39, 1949, p. 970-976.
- <sup>14)</sup> SLATER, J. C., *Microwave Transmission*. Mc. Graw-Hill, New York, 1942, p. 264.
- <sup>15)</sup> LEHMANN, G., Etude de l'équilibre thermodynamique des antennes de T. S. F. *Annales des Télécommunications*, Vol. 1, 1946, p. 91-98.
- <sup>16)</sup> STRUTT, M. J. O., Ultra- and extreme-short wave reception. D. Van Nostrand Co., New York 1947.
- <sup>17)</sup> SPESCHA, G. A., Experimentelle Untersuchungen über spontane Photonschwankungen. Diss. ETH, 1959, Nr. 2952.



## Experimentelle Bestimmung der spontanen Photonenschwankungen

Mitteilung aus dem Institut für höhere Elektrotechnik  
der Eidgenössischen Technischen Hochschule, Zürich

von **G. A. Spescha** und **M. J. O. Strutt**

(11. IX. 1959)

*Zusammenfassung.* Am Anfang wird die Funktionsweise der *p-n*-Halbleiter-Photodiode kurz erläutert. Hierauf werden Messungen über Quantenwirkungsgrad, Dunkelstrom, Linearität, Frequenzgang und Rauschverhalten an einem ausgesuchten Exemplar einer Ge-*p-n*-Photodiode beschrieben. Es zeigt sich, dass diese Photodiode in einem bestimmten Bereich die Eigenschaften des in einer früheren Veröffentlichung «Theoretische Überlegungen zur experimentellen Bestimmung der spontanen Photonenschwankungen»<sup>1)</sup> diskutierten Modells eines Photonenempfängers hat. Hierauf werden Rauschmessungen am Photostrom ausgeführt bei Beleuchtung mit rauschmoduliertem Licht. Zur Eichung der Rauschmodulation wird berechnet, wie gross die an die Lampe angelegte Rauschspannung sein muss, damit das nach A. EINSTEIN berechnete auf die Photodiode auftreffende mittlere Schwankungsleistungsquadrat verdoppelt wird. Die gemessenen Werte des Rauschstromquadrates am Photodiodenausgang entsprechen den Erwartungen. Es lässt sich daraus die Gültigkeit der Bose-Einstein-Statistik für die Photonen im Gebiet  $h\nu/kT \gg 1$  beweisen.

### 1. Die Germanium *p-n*-Photodiode

Um einen für die Bestimmung der spontanen Photonenschwankungen geeigneten Detektor zu finden, wurden mehrere verschiedene Photoleiter untersucht in bezug auf Rauschen und Quantenwirkungsgrad. Die Versuche verliefen erfolglos und wurden aufgegeben zugunsten der Germanium-Photodiode. Wie im folgenden gezeigt wird, hat eine gute Ge-*p-n*-Photodiode in gewissen Grenzen die Eigenschaften, die dem in <sup>1)</sup> beschriebenen Photonenempfänger entsprechen. Um das zu veranschaulichen, soll die Funktionsweise der Ge-*p-n*-Photodiode kurz dargestellt werden.

#### 1.1. Die Photonenabsorption in Germanium

Bei nicht allzu hoch dotiertem Germanium sind bei Zimmertemperatur praktisch alle Störstellen ionisiert. Die Aktivierungsenergie  $\Delta W_i$ , die gebraucht wird, um ein Elektron aus dem Valenzband in das Leitungsband zu heben, beträgt bei Zimmertemperatur ungefähr

$$\Delta W_i \approx 0,72 \text{ eV.}$$

Trifft ein Photon auf die Kristalloberfläche auf, so wird es entweder reflektiert oder vom Halbleiter absorbiert. (Die Transmission sei zu vernachlässigen.) GOUCHER<sup>2)</sup> hat gezeigt, dass fast jedes absorbierte Photon mit genügend grosser Energie, so dass  $h\nu \geq \Delta W_i$ , ein Elektron-Loch-Paar erzeugt. Im Bereich  $\Delta W_i \leq h\nu < 2 \Delta W_i$  – entspricht dem Wellenlängenbereich  $0,86 \mu\text{m} < \lambda < 1,7 \mu\text{m}$  – ist damit zu rechnen, dass etwa 40% der auftreffenden Photonen reflektiert werden. Ferner sind noch kleine Verluste zu berücksichtigen infolge andersartiger Absorptionsvorgänge oder durch sehr rasche Rekombination, so dass das Elektron-Loch-Paar bei einer gegebenen Messmethode nicht registriert werden kann. Es kann daher bei einem Germanium-Photonenempfänger mit einem maximalen Quantenwirkungsgrad von ungefähr 50% gerechnet werden. Wenn der Halbleiter homogen ist, so darf man annehmen, dass jedes auftreffende Photon dieselbe Chance hat, ein Trägerpaar zu erzeugen, da ja die Wellenlänge der Strahlung sehr viel grösser ist als der Atomabstand.

### 1.2. Die Wirkung des *p-n-Kontaktes*

Wenn in der Nähe einer in Sperrichtung vorgespannten *p-n-Kontakt*-schicht ein Ladungsträgerpaar erzeugt wird, so bewegt sich der Minderheitsträger rasch auf die andere Seite der Kontaktschicht, worauf der Stromfluss wieder aufhört<sup>3) 4) 5) 6) 7)</sup>. Das heisst, wenn in der Umgebung der Kontaktschicht, so dass die Distanz kleiner ist als die Diffusionslänge des Minderheitsträgers, ein Trägerpaar erzeugt wird, so entsteht dadurch im Diodenkreis ein relativ scharfer Impuls. Seine Fläche (Strom mal Zeit) beträgt  $e$ . Aus der Kopplung zwischen den Vorgängen der Photonenabsorption, der Trägererzeugung und der Stromimpulse am Detektorausgang folgt, dass für nicht zu hohe Frequenzen die Fourierdarstellung der absorbierten Strahlung und jene des elektrischen Stromes gleich ist. Die Formeln unterscheiden sich nur durch die Werte  $h\nu$ , bzw.  $e$ .

Die Germaniumphotodiode erfüllt damit die an den idealen Detektor gestellten Bedingungen in einem gewissen Bereich. Unter Berücksichtigung der Reflexionsverluste erfüllt sie auch die an den idealen Detektor mit verlustbehafteter Oberfläche gestellten Bedingungen. Wenn man die übrigen Verluste auch als statistisch über Ort und Zeit verteilt annimmt, so darf man die  $\alpha$  gemäss Gleichung (43) in <sup>1)</sup> zusammenfassen. Die Photodiode entspricht dann immer noch unserem Modell.

### 1.3. Elektrisches Ersatzschaltbild

Legt man an eine *p-n-Diode* eine Spannung an in umgekehrter Richtung als in Figur 1 gezeichnet, so fliesst für Spannungen  $|U| > 1 \text{ V}$  ein spannungsunabhängiger Sperrstrom  $|I_0|$ . Derselbe nimmt aber expo-

nentiell mit steigender Temperatur zu. Die gesperrte Diode lässt sich in einem Ersatzschaltbild gemäss Abbildung 2 darstellen.

In Figur 2 bedeuten  $R_d$  den differentiellen Widerstand der gesperrten Diode,  $R_a$  den Ableitwiderstand,  $R_z$  den Zuleitungswiderstand und  $C$  die

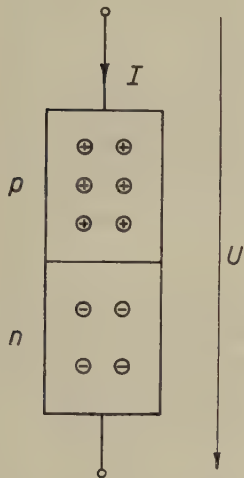


Fig. 1. Positiv gewählte Spannungs- und Stromrichtungen an der TP 50.

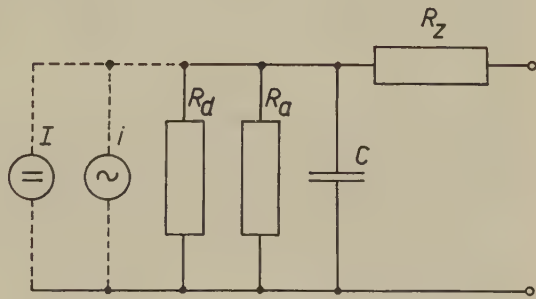


Fig. 2  
Ersatzschaltbild der in Sperrrichtung vorgespannten  $p$ - $n$ -Diode.

Summe von Diffusions- und Sperrschichtkapazität. Die Stromquelle  $I$  besteht aus der Summe von Sperrstrom und dem meist viel kleineren Ableitstrom,  $i$  ist der dazugehörige Rauschstrom.

Wird die Diode ohne Beleuchtung in Sperrrichtung vorgespannt, so beträgt der Strom

$$I = -I_0. \quad (1)$$

Da dieser Strom entsteht durch die thermische Erzeugung von Ladungsträgerpaaren in der Sperrschichtgegend, und da diese Erzeugung der Boltzmann-Statistik gehorcht, d. h. für die Abweichung der Anzahl pro Zeitintervall  $T_0$  erzeugten Träger  $\Delta n$  vom Mittelwert  $\bar{n}$

$$(\Delta n)^2 = \bar{n} \quad (2)$$

gilt, folgt für das zum Sperrstrom  $I_0$  gehörige Rauschstromquadrat  $\overline{i_0^2}$ :

$$\overline{i_0^2} = 2 e I_0 \Delta f. \quad (3)$$

Die Ableitung von Gleichung (3) ist analog zur Ableitung von Gleichung (16) in <sup>1)</sup>. Gleichung (3) ist experimentell schon häufig bestätigt worden<sup>3) 8) 9)</sup>.

Wird die Diode beleuchtet, so entsteht durch die zusätzliche Trägerpaarerzeugung ein Strom  $I_p$ , welcher sich zum Sperrstrom addiert, so dass jetzt der gesamte Strom

$$I = -(I_0 + I_p) \quad (4)$$

beträgt. Das gesamte Rauschstromquadrat beträgt jetzt

$$\overline{i^2} = \overline{i_0^2} + \overline{i_p^2}, \quad (5)$$

denn die beiden Rauschquellen sind voneinander unabhängig. Wenn die Statistik der Trägererzeugung infolge von Photonenabsorption den Schwankungsfaktor  $\gamma$  aufweist, d. h.  $(\Delta n)^2 = \gamma \bar{n}$ , so muss demzufolge das Rauschstromquadrat des Photostromes

$$\overline{i_p^2} = 2 e I_p \gamma \Delta f \quad (6)$$

sein. Denn  $\gamma$  ist der Schwankungsfaktor der absorbierten Strahlung und somit der Schwankungen bei der Trägerpaarerzeugung. Der Zusammenhang zwischen dem Schwankungsfaktor  $\mu$  der einfallenden Strahlung, dem Quantenwirkungsgrad  $\alpha$  des Detektors und dem Schwankungsfaktor  $\gamma$  des Detektorausgangssignales kann durch Gleichung (38) in <sup>1)</sup> ausgedrückt werden:

$$\gamma = 1 + \alpha (\mu - 1) \quad (7)$$

Die Gültigkeit der Gleichungen (6) und (7) soll im folgenden experimentell bewiesen werden.

## 2. Messungen an einer ausgesuchten Photodiode

Für alle im folgenden beschriebenen Messungen wurde eine Photodiode vom Typ TP 50 von Siemens verwendet. Das betreffende Exemplar, mit Nr. 20 bezeichnet, wurde aus vielen Photodioden vom gleichen Typ und ähnlichen Typen anderer Firmen ausgesucht in bezug auf niedriges Rauschen, kleinen Dunkelstrom und hohen Wirkungsgrad. Die TP 50 ist eine gezogene  $p$ - $n$ -Diode, bei welcher das Licht durch eine Öffnung im Gehäuse (mit einer Art Linse verschlossen) seitlich auf die Sperrschicht fällt.

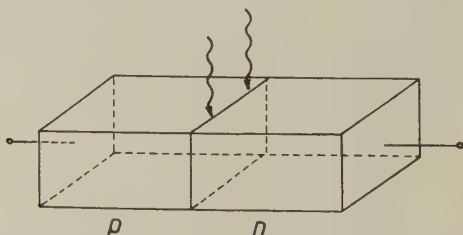


Fig. 3

Prinzip des Aufbaues einer TP 50.

Das Licht fällt seitlich auf die Sperrschicht.



## 2.1. Wirkungsgrad und Dunkelstrom

Unmittelbar auf dem Diodenfenster aufliegend wurde ein dünnes Blech montiert mit einer rechteckigen Öffnung von  $0,930 \text{ mm} \times 0,455 \text{ mm}$ . Die Stellung dieser (mit Nr. 9 bezeichneten) Blende wurde so gewählt, dass bei einem senkrecht zum Fenster einfallenden Lichtstrahl die Quantenausbeute möglichst hoch ist. (Rechteckfläche möglichst über der Sperrschichtzone.) Als Lichtquelle wurde eine geeichte Anordnung von Wolframbandlampe, Linsen und einem Interferenzfilter verwendet. An einer bestimmten Stelle betrug die Strahlungsintensität  $3,9 \cdot 10^{-5} \text{ W/mm}^2$  bei einer mittleren Wellenlänge  $\lambda = 1,493 \text{ }\mu\text{m}$  und einer Halbwertsbreite  $\Delta\lambda \approx 0,030 \text{ }\mu\text{m}$ . Mit dieser Anordnung wurde der Quantenwirkungsgrad  $\alpha$  der TP 50 Nr. 20 bestimmt zu

$$\alpha = 0,36.$$

Die Sperrspannung betrug dabei  $U = -10 \text{ V}$ , wie in allen folgenden Messungen; die Grösse der Sperrspannung ist aber ohne nennenswerten Einfluss auf alle Messresultate.

Der Verlauf von  $\alpha$  über  $\lambda$  wurde dem Datenblatt der TP 50 entnommen und die Kurve auf den Wert 0,36 bei  $\lambda = 1,49 \text{ }\mu\text{m}$  normiert. Die Genauigkeit dieser Kurve ist nicht wesentlich für die folgenden Messungen.

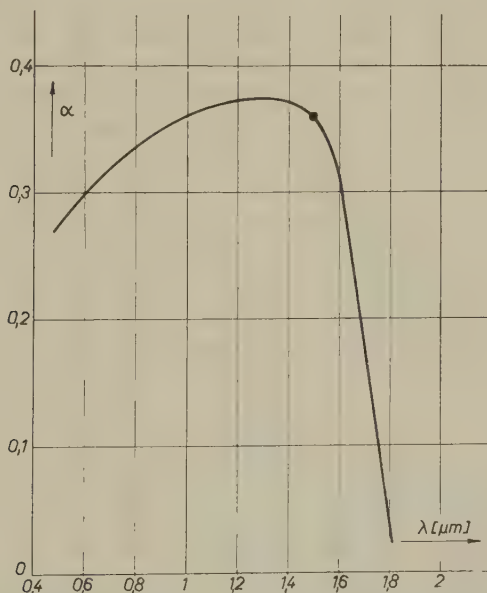


Fig. 4

Verlauf des Quantenwirkungsgrades  $\alpha$  über die Lichtwellenlänge  $\lambda$ . Kurve nach Datenblatt der TP 50, normiert auf den Wert 0,36 bei  $\lambda = 1,49 \text{ }\mu\text{m}$ , gemessen an der TP 50, Nr. 20.

Der Dunkelstrom der TP 50 beträgt bei  $T = + 21^{\circ}\text{C}$  und  $U = -10\text{V}$ :

$$I_0 = 1,15 \mu\text{A}.$$

## 2.2. Linearität

Die Linearität des Zusammenhanges zwischen auftreffender Strahlungsleistung und abgegebenem Strom des Detektors, eine Voraussetzung der statistischen Absorptionstheorie, wurde mittels des Abstandsgesetzes überprüft. Wie Figur 5 zeigt, ist die erforderte Linearität bei Photoströmen bis zu  $25 \mu\text{A}$  (und noch viel weiter) vorhanden.

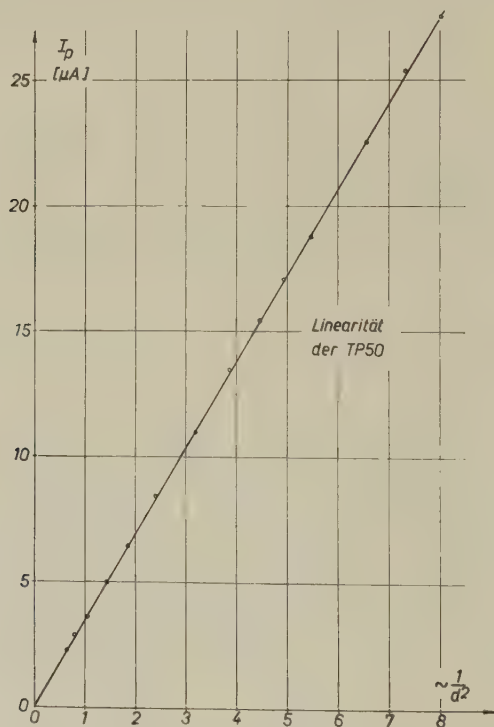


Fig. 5

Photostrom  $I_p$  der TP 50 als Funktion des Abstandes  $d$  zwischen Lampe und Photodiode.

## 2.3. Frequenzgang

Der Frequenzgang der TP 50 wurde untersucht, indem das Licht zwischen Lampe und Diode mittels einer Unterbrecherscheibe zu 100% moduliert wurde. Die Grundharmonische des Kurzschlussphotostromes wurde als Funktion der Unterbrecherfrequenz gemessen. Siehe Figur 6.

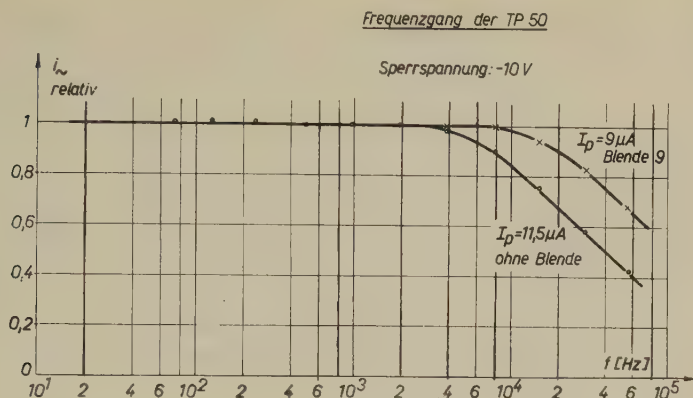


Fig. 6

Relative Frequenzempfindlichkeitskurve der TP 50. Sperrspannung  $U = -10\text{ V}$ , Modulationstiefe 100%, Belastung praktisch Kurzschluss. Messung mit Blende in optimaler Stellung und ohne.

Die Messung bei Beleuchtung des ganzen Photodiodenfensters – ca.  $2\text{ mm} \times 3\text{ mm}$  – zeigt einen stärkeren Frequenzabfall als die Messung mit der aufgesetzten Blende. Der Grund dafür scheint darin zu liegen, dass für die weit von der Sperrschicht entfernt erzeugten Minoritätsträger die Diffusionszeit bis zum Erreichen der Sperrschicht in Rechnung zu ziehen ist. Berechnung der Diffusionszeiten mit Hilfe von charakteristischen Halbleitergrößen für Germanium  $-p-n$ -Dioden führt auf solche Größenordnungen, dass der beobachtete Frequenzgang dadurch erklärt werden kann.

Die Bestimmung der Größen des Ersatzschaltbildes (Fig. 2) ergibt für die TP 50 Werte von den Größenordnungen  $R_d R_a / (R_d + R_a) \approx 100\text{ M}\Omega$ ,  $R_z \leq 100\text{ }\Omega$ ,  $C \approx 10 \div 20\text{ pF}$ . Dadurch lässt sich der gemessene Frequenzgang des Kurzschlußstromes nicht erklären. Derselbe scheint vielmehr wesentlich durch die Geometrie der Beleuchtung bedingt zu sein.

#### 2.4. Rauschen

Für alle Rauschmessungen wurde die in Figur 7 dargestellte Rauschmessanlage benutzt. Diese weist 12 schmalbandige Filter auf mit mittleren Frequenzen von 70 Hz bis 100 kHz. Genauere Angaben finden sich in <sup>10)</sup>.

Der Rauschstrom der TP 50 wurde gemessen bei Beleuchtung des ganzen Fensters mit Licht, das von einer Wolframbandlampe herrührte. Der Schwankungsfaktor  $\mu$  der in der Diode wirksamen Strahlung betrug daher  $\mu = 1$ , unter Voraussetzung von Einsteins Gleichung.

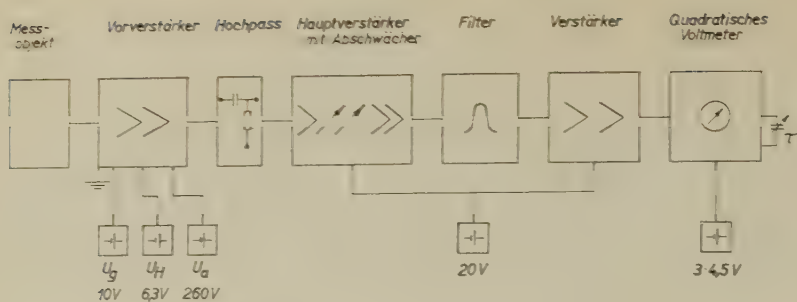


Fig. 7

Blockschema der Rauschmessanlage.

In Fig. 8 ist das Rauschstromquadrat (Kurzschluss) als Funktion der Frequenz bei drei verschiedenen Beleuchtungsstärken aufgetragen. Unter etwa 1 kHz weist die TP 50 Funkelrauschen auf, darüber fast weisses, d. h. frequenzunabhängiges Rauschen. Der Frequenzabfall ist kleiner, als nach den Messungen mit modulierte Licht zu erwarten ist. Die Ursache

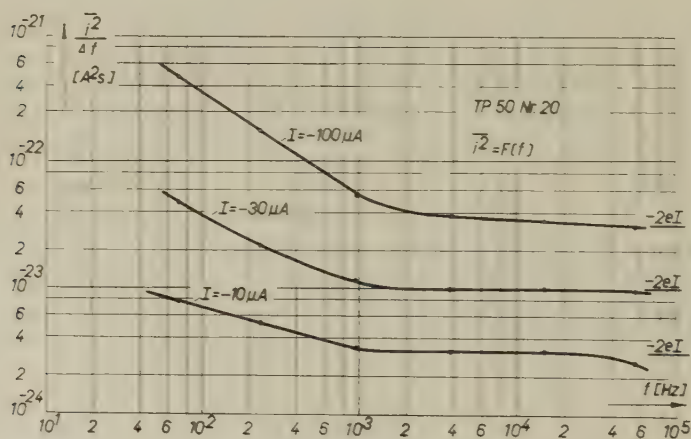


Fig. 8

Rauschstromquadrat als Funktion der Frequenz.

Sperrspannung  $U = -10$  V.  $I = -(I_0 + I_p)$ .

der Nichtübereinstimmung ist noch zu untersuchen. Die Umgebung von 2 kHz ist für die geplanten Messungen geeignet, weil dort das Funkelrauschen verschwindet und noch kein Frequenzabfall auftritt.



Figur 9 zeigt das Rauschstromquadrat als Funktion der Beleuchtungsstärke, bzw. des Gleichstromes (Dunkelstrom + Photostrom) bei der Frequenz 1,93 kHz. Unterhalb etwa  $20 \mu\text{A}$  ist  $\overline{i^2} = 2 e I \Delta f$ , d. h. es tritt kein Funkelrauschen auf.

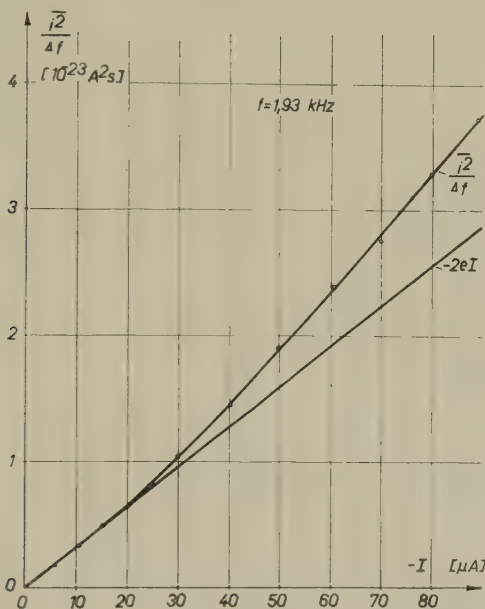


Fig. 9

Rauschstromquadrat der TP 50, Nr. 20, als Funktion des Stromes.

Mittlere Messfrequenz  $f = 1,93 \text{ kHz}$ , Sperrspannung  $U = -10 \text{ V}$ .  $I = -(I_0 + I_p)$ .

Aus den angeführten Messungen ist ersichtlich, dass die verwendete Photodiode TP 50 Nr. 20 dem in <sup>1)</sup> beschriebenen Modell eines idealen Photonenempfängers entspricht bei einer Frequenz von 1,93 kHz und einem Strom bis zu  $20 \mu\text{A}$ , abgesehen vom Dunkelstrom und dem Quantenwirkungsgrad. Die effektive Bandbreite der Rauschmessanlage beträgt  $\Delta f = 92 \text{ Hz}$  bei der mittleren Messfrequenz  $f = 1,93 \text{ kHz}$ . Erwärmung der Diode zwecks Vergrößerung des Dunkelstromes ergab dieselbe Abhängigkeit des Dunkelrauschstromquadrates  $\overline{i_0^2}$  vom Dunkelstrom  $I_0$ , wie für das gesamte Rauschstromquadrat  $\overline{i^2}$  gemessen wurde als Funktion von  $I$ .  $\overline{i_0^2}$  und  $I_0$  sind daher ohne Schwierigkeit von den gemessenen totalen Strömen  $\overline{i^2}$  und  $I$  zu separieren. Wenn wir weiterhin von der Voraussetzung ausgehen, dass alle Verluste (Reflexion, Rekombination, usw.) nicht korreliert sind und mit einer Poisson-Statistik dargestellt werden können, so entspricht die ausgesuchte Photodiode im gegebenen Arbeitspunkt dem in <sup>1)</sup> beschriebenen verlustbehafteten Photonenempfänger.

### 3. Messungen mit rauschmoduliertem Licht

#### 3.1. Berechnung der äquivalenten Modulationsrauschspannung

##### a) Allgemeines

Wir versuchen, den Schwankungsfaktor  $\mu$  des auf den Detektor auftreffenden Lichtstrahles zu vergrössern, um den Zusammenhang zwischen  $\mu$  und  $\gamma$  experimentell nachzuweisen. Vergrösserung von  $\mu$  ist möglich durch starke Temperaturerhöhung des Strahlers oder durch Modulation des Lichtes mit einem Rauschsignal. Um bei  $\lambda = 10^{-6} \text{ m}$  einen Faktor  $\mu = 2$  zu erreichen, muss die Strahlertemperatur  $T \approx 2 \cdot 10^4 \text{ }^\circ \text{K}$  sein. Die Modulation des Lichtes, herrührend von einer Wolframbandlampe, ist daher experimentell leichter durchzuführen. Bei allen Messungen mit der Bandlampe soll die Bedingung  $h\nu/kT \gg 1$  erfüllt sein. Ferner setzen wir voraus, dass die Quantenempfindlichkeit über die ganze Diodenoberfläche (innerhalb der Blendenöffnung) nicht merklich variiert, was experimentell bestätigt wurde.

Indem man der Gleichspannung  $U$  an der Bandlampe eine Wechselspannung  $u$  überlagert, wird dadurch die Temperatur der Lampe moduliert und damit die emittierte Leistung. Diese aufmodulierte Leistung ist bei sehr kleinen relativen Temperaturänderungen praktisch unabhängig von den Eigenschwankungen des Strahlers. Es ist  $h\nu/kT \gg 1$ . Der Schwankungsfaktor der von der nicht modulierten Quelle stammenden Strahlung  $\mu_q$  ist  $\mu_q = 1$  und nicht von der Temperatur abhängig. Er wird daher durch eine kleine Temperaturänderung nicht verändert. Wenn daher das auf die Diode auftreffende Schwankungsleistungsquadrat, von den Schwankungen der unmodulierten Strahlungsquelle gemäss A. EINSTEIN herrührend,  $\overline{p_q^2}$  beträgt, und das Schwankungsleistungsquadrat infolge Modulation der Strahlungsquelle mit einem Rauschsignal  $\overline{p_m^2}$ , so ist die gesamte auf die Diode auftreffende Schwankungsleistung  $\overline{p^2}$

$$\overline{p^2} = \overline{p_q^2} + \overline{p_m^2}. \quad (8)$$

Der Schwankungsfaktor der auf die Diode auftreffenden Leistung beträgt somit

$$\mu = \mu_q + \mu_m. \quad (9)$$

Wir nehmen nun vorläufig einmal an, dass die Gleichung nach A. EINSTEIN und H. A. LORENTZ, Gleichung (17) in <sup>1)</sup>, stimmt, d. h.

$$\overline{p_v^2} = 2 h \nu \overline{P_v} A f. \quad (10)$$

Ferner beschränken wir uns in allen folgenden Gleichungen auf ein schmales Frequenzintervall  $\Delta f \ll f$  der Fourierdarstellung, da die Modulation infolge der thermischen Trägheit der Strahlungsquelle frequenzabhängig ist.

Damit definieren wir ein äquivalentes Modulationsrauschspannungsquadrat  $\overline{u_{m0}^2}$  so, dass die durch diese Modulation bewirkte auf den Detektor auftreffende Schwankungsleistung gleich der nach A. EINSTEIN berechneten ist.  $\overline{u_{m0}^2}$  hängt ab von der Lampe, von  $\nu$  und von  $f$ . Diese Definition ist günstig, wenn man ein schmales Strahlungsfrequenzintervall  $\Delta\nu \ll \nu$  betrachtet und wenn dasselbe auf beiden Seiten durch steile Flanken begrenzt ist.

Die durch Modulation bewirkte Rauschleistung ist nicht völlig gleichbeschaffen wie die natürliche Rauschleistung. Die aufmodulierten Schwankungen sind sowohl über die einzelnen Strahlungsfrequenzintervalle  $d\nu$  als auch über die einzelnen Flächenelemente der Diode  $da$  vollständig korreliert. Da angenommen werden kann, dass sich die einzelnen Flächenelemente der Diode bezüglich der Photonenabsorption voneinander unabhängig verhalten, so reagiert die Photodiode gleich auf Strahlungsschwankungen, ob dieselben über die einzelnen Flächenelemente korreliert sind oder nicht. Der Einfluss der Korrelation über  $\nu$  ist schwieriger abzuschätzen. Doch da man theoretisch die Bandbreite  $\Delta\nu$  beliebig klein wählen kann, ohne dass sich in den nun folgenden Gleichungen für  $\overline{u_{m0}^2}$  etwas ändert, dürfte er auch nicht erheblich sein in bezug auf die Beweiskraft des Experimentes für die in <sup>1)</sup> dargelegte Rauschtheorie der Photodiode.

Wenn die auf den idealisierten Detektor treffende Strahlung nicht eine rechteckige Spektralfunktion aufweist, derart, dass sie auf beiden Seiten scharf begrenzt ist und dazwischen die spezifische Anzahl Quanten pro Frequenzbandeinheit konstant ist, so ist es schwierig zu sagen, welches die auf den realen Detektor auftreffende Schwankungsleistung ist. Vgl. die Definition von  $\bar{\alpha}^*$  in Abschnitt 5.3. in <sup>1)</sup>. Ohne diese Schwankungsleistung zu kennen, kann man die äquivalente Modulationsrauschspannung nicht berechnen. Weil die aufmodulierten Schwankungen korreliert sind über  $\nu$  und  $a$ , im Gegensatz zu den natürlichen, so kann man nicht  $\mu$  überhaupt vergrössern, sondern nur  $\mu$  bezogen auf die auf den Detektor auftreffende Strahlung. Es ist klarer, die Rauschtheorie der nichtidealen Photodiode schon in die Berechnung der äquivalenten Modulationsrauschspannung miteinzubeziehen, gemäss folgender Definition:

$\overline{u_{m1}^2}$  sei das an die Lampe anzulegende Modulationsrauschspannungsquadrat, welches bewirkt, dass die Schwankungen am Diodenausgang verdoppelt werden.  $\overline{u_{m1}^2}$  soll mittels der Gleichung von A. EINSTEIN und der postulierten Photodiodenrauschtheorie berechnet werden. Wenn man dieses Spannungsquadrat an die Lampe anlegt, und der gemessene Wert  $\gamma$  steigt dann tatsächlich von 1 auf 2, so ist diese Aussage gleichbedeutend, wie wenn man an die Lampe das Spannungsquadrat  $\overline{u_{m0}^2}$  anlegt, und  $\gamma$

steigt von 1 auf den Wert, der gemäss Gleichung (7), integriert über die gesamte Strahlung, berechnet wird.

### b) Berechnung von $\overline{u_{m0}^2}$

Die Strahlungsquelle sei eine Wolframbandlampe. Im betrachteten Frequenzgebiet sei  $\mu = 1$ . Ein Filter mit sehr steilen Flanken soll von der gesamten Strahlung nur einen schmalen Ausschnitt  $\Delta\nu \ll \nu$  durchlassen. Die mittlere auf den Detektor treffende Leistung betrage  $\overline{P_{\Delta\nu}}$ , das Schwankungsleistungsquadrat beträgt dann gemäss Gleichung (10)

$$\overline{p_{\Delta\nu}^2} = 2 h \bar{\nu} \overline{P_{\Delta\nu}} \Delta f, \quad (10a)$$

wo  $\bar{\nu}$  die mittlere Strahlungsfrequenz im Intervall  $\Delta\nu$  ist.

Moduliert man die Gleichspannung  $U$  an der Lampe mit einer überlagerten sinusförmigen Wechselspannung  $u_f$  der Frequenz  $f$ , so überlagert sich der mittlern abgestrahlten Leistung  $\overline{P_{\Delta\nu}}$  eine Wechsellleistung  $\overline{p_{\Delta\nu f}}$ . ( $u_f$ ;  $\overline{p_{\Delta\nu f}}$  sollen beide Effektivwerte sein). Wir definieren einen Modulationsfaktor  $\delta$  wie folgt:

$$\delta_{\nu f} = \frac{\frac{\overline{p_{\Delta\nu f}}}{\overline{P_{\Delta\nu}}}}{\frac{u_f}{U}}. \quad (11)$$

$\delta_{\nu f}$ , abhängig von der Lichtfrequenz  $\nu$  und von der Modulationsfrequenz  $f$ , ist in einem gegebenen Arbeitspunkt der Lampe experimentell zu bestimmen. Ist  $\delta_{\nu f}$  bestimmt, und legen wir an die Lampe statt der sinusförmigen Modulationsspannung  $u_f$  eine rauschförmige Modulationsspannung  $u_m$  an, welche wir nur in einem schmalen Intervall  $\Delta f$ , so dass  $\Delta f \ll f$ , betrachten, so folgt aus Gleichung (11) für die aufmodulierte Rauschleistung

$$\overline{p_{\Delta\nu}} = \overline{P_{\Delta\nu}} \frac{u_m}{U} \delta_{\nu f}. \quad (12)$$

Hier bedeuten  $\overline{p_{\Delta\nu}}$  und  $u_m$  Momentanwerte. Die Bildung des quadratischen Mittelwertes über längere Zeit ergibt

$$\overline{p_{\Delta\nu}^2} = (\overline{P_{\Delta\nu}})^2 \frac{\overline{\delta_{\nu f}^2}}{U^2} \overline{u_m^2}. \quad (13)$$

Gemäss Definition ist  $\overline{u_m^2} = \overline{u_{m0}^2}$ , wenn die aufmodulierte Rauschleistung, Gleichung (13), gleich der natürlichen nach Gleichung (10a) ist. Daraus bestimmt sich  $\overline{u_{m0}^2}$  zu

$$\overline{u_{m0}^2} = \frac{2 U^2 h \bar{\nu}}{\overline{P_{\Delta\nu}} \delta_{\nu f}^2} \Delta f. \quad (14)$$

$\overline{P_{\Delta\nu}}$  wird zweckmässigerweise mittels der Photodiode selbst bestimmt. Gemäss der Definition für  $\alpha$  in <sup>1)</sup> beträgt der Photostrom

$$I_p = \overline{P_{\Delta\nu}} \cdot \frac{e}{h \nu} \cdot \alpha. \quad (15)$$

Damit schreibt sich Gleichung (14) wie folgt:

$$\overline{u_{m0}^2} = \frac{2 e \alpha}{I_p} \cdot \frac{U^2}{\delta_{vf}^2} \Delta f. \quad (16)$$

c) Berechnung von  $\overline{u_{m1}^2}$

Im obigen Spezialfall, wo  $\Delta\nu \ll \nu$  und die Flanken des Begrenzungsfilters steil sind, lässt sich  $\overline{u_{m1}^2}$  leicht aus dem schon berechneten  $\overline{u_{m0}^2}$  erhalten. Da

$$\mu = \mu_q + \mu_m \quad (9)$$

ist, und da  $\mu_q = 1$  und  $\overline{u_{m0}^2}$  so berechnet worden ist, dass auch  $\mu_m = 1$  ist, kann man wie folgt vorgehen:

Die Bedingung für  $\overline{u_{m1}^2}$  lautet, dass durch Modulation der Lampe  $\gamma$  von 1 auf 2 steigen muss. Anhand von Gleichung (7) erhält man die Bedingung, dass

$$\mu = 1 + \frac{1}{\alpha}$$

sein muss, d. h.

$$\mu_m = \frac{1}{\alpha}.$$

Nach dem oben Gesagten gilt daher

$$\overline{u_{m1}^2} = \frac{1}{\alpha} \cdot \overline{u_{m0}^2}. \quad (17)$$

Dasselbe Ergebnis erhält man auch ohne die Verwendung von Gleichung (7), indem man die aufmodulierte Schwankungsleistung für sich allein betrachtet. Infolge der Diodenverluste wird das aufmodulierte Leistungsquadrat  $\overline{p_{\Delta\nu}^2}$  um  $\alpha^2$  geschwächt, die mittlere Leistung  $\overline{P_{\Delta\nu}}$  um  $\alpha$ . Das führt auf dieselbe Gleichung für  $\overline{u_{m1}^2}$ .

Im allgemeinen Fall trifft ein beliebiger Ausschnitt der emittierten Strahlung auf die Photodiode, und dieselbe hat eine beliebige Quantenwirkungsgradfunktion  $\alpha(\nu)$ . Die Berechnung von  $\overline{u_{m1}^2}$  wird dadurch kompliziert. Im besondern muss dabei berücksichtigt werden, dass auch der Modulationsfaktor  $\delta_{vf}$  eine Funktion von  $\nu$  ist.

Die Situation vereinfacht sich, wenn man  $\delta_{vf}$  nicht schmalbandig bestimmt bei der Frequenz  $\nu$ , sondern breitbandig in derselben Anordnung Lampe-Filter-Photodiode, mit welcher nachher die Rauschmessungen mit rauschmoduliertem Licht durchgeführt werden. Dieser Wert sei mit  $\delta_f$  bezeichnet. Man kann zeigen, dass man dieselbe Gleichung (16/17) erhält, multipliziert mit einem Faktor  $B$ :

$$\overline{u_{m1}^2} = \frac{2 e}{I_p} \frac{U^2}{\delta_f^2} \Delta f \cdot B. \quad (18)$$



$B$  ist ein dimensionsloser Ausdruck, in welchem 3 Integrale über  $\nu$  vorkommen mit den Funktionen  $\alpha(\nu)$ , der relativen spektralen Quantenemissionsfunktion  $\varphi(\nu)$  und  $\nu^n$ . Genaueres siehe <sup>10)</sup>. Meist erhält man für  $B$  einen Wert, der einige % kleiner ist als 1; für schmale Bandbreiten  $\Delta\nu$  strebt  $B$  gegen 1. Ungenaue Kenntnis der Funktionen  $\alpha(\nu)$  und  $\varphi(\nu)$  führt daher meist nur zu kleinen Fehlern in der Bestimmung von  $\overline{u_{m,1}^2}$ .

### 3.2. Messungen

#### a) Messanordnung, Daten

Als Strahlungsquelle diente eine Wolframbandlampe vom Typ 6002E (Philips). Normale Betriebsdaten: 6 V, 16 ÷ 17 A. Der Arbeitspunkt wurde gewählt bei einem Lampenstrom von 11,50 A. Die wirkliche Temperatur  $T$  wurde pyrometrisch bestimmt. Bei schwacher Variation über die Bandfläche betrug sie im Mittel:  $T = 2260^\circ \text{K}$ .

Die relative spektrale Emissionskurve wurde bestimmt aus dem Planck'schen Gesetz und der entsprechenden Korrekturkurve für Wolframbandlampen, wie sie J. C. DE VOS<sup>11)</sup> angegeben hat.

Die oben beschriebene Photodiode TP 50 Nr. 20 diente als Photonenempfänger.

Um die Strahlung gegen die kürzern Wellen hin zu beschneiden, und um den gewogenen Mittelwert  $\overline{\alpha^*}$  zu vergrössern, wurde zwischen Lampe und Photodiode das Masseglasfilter RG 5A gelegt. Seine Daten sind aus Figur 10 ersichtlich.

Damit kann der totale Quantenwirkungsgrad gemäss Gleichung (52) in <sup>1)</sup> bestimmt werden zu

$$\overline{\alpha^*} = 0,29.$$

Messung des Modulationsfaktors  $\delta_f$  der Lampe mit der obigen Messanordnung ergab

$$\frac{\delta_f^2}{U^2} = 2,1 \cdot 10^{-6} \text{ V}^{-2}.$$

Der Faktor  $B$  in Gleichung (18) wurde zu

$$B = 0,93$$

berechnet.

Die Beleuchtungsstärke wurde so gewählt, dass der Photostrom

$$I_p = 1,36 \cdot 10^{-5} \text{ A}$$

betrug.

Daraus lässt sich  $\overline{u_{m,1}^2}$  berechnen:

$$\overline{u_{m,1}^2} = 1,05 \cdot 10^{-8} \Delta f [\text{V}^2], \Delta f \text{ in s}^{-1}.$$

Zur Modulation der Lampe wurde ein Rauschgenerator verwendet, der im Gebiet von 2kHz ein weisses Rauschen aufweist.

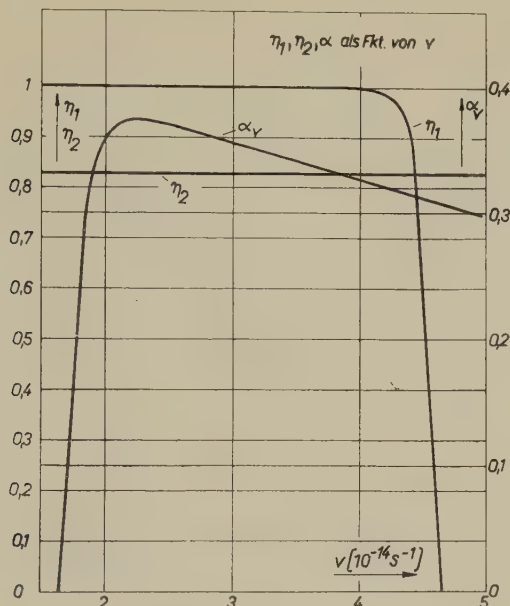


Fig. 10

Sämtliche Verluste zwischen Wolframband und idealisierter Photodiode als Funktion von  $\nu$ .

$\alpha_v$ : Quantenwirkungsgrad der wirklichen Photodiode.

$\eta_1$ : Transmissionskurve des Masseglasfilters RG5A, 2 mm dick, von SCHOTT, Jena, gemäss Datenblatt.

$\eta_2$ : 1 minus Reflexionsverluste von Glaskolben und Masseglasfilter.

### b) Messresultate

Die Rauschmessungen des Photostromes  $\overline{i_p^2}$  als Funktion der Modulationsspannung sind in Figur 11 aufgetragen. Der Rauschstrom wurde auf  $\gamma$  normiert; gemäss Gleichung (6) beträgt

$$\gamma = \frac{\overline{i_p^2}}{2 e I_p \Delta f} \quad (6a)$$

Auf der Abszisse wurde der Schwankungsfaktor  $\mu'$  der auf die idealisierte Diode auftreffenden Strahlung aufgetragen; dieser beträgt nach Gleichung (9) und gemäss der Definition für  $\overline{u_{m_1}^2}$ :

$$\mu' = 1 + \frac{\overline{u_m^2}}{u_{m_1}^2} \quad (19)$$

Die gemessenen Werte entsprechen ungefähr der Erwartung, dass  $\gamma = \mu'$  ist.

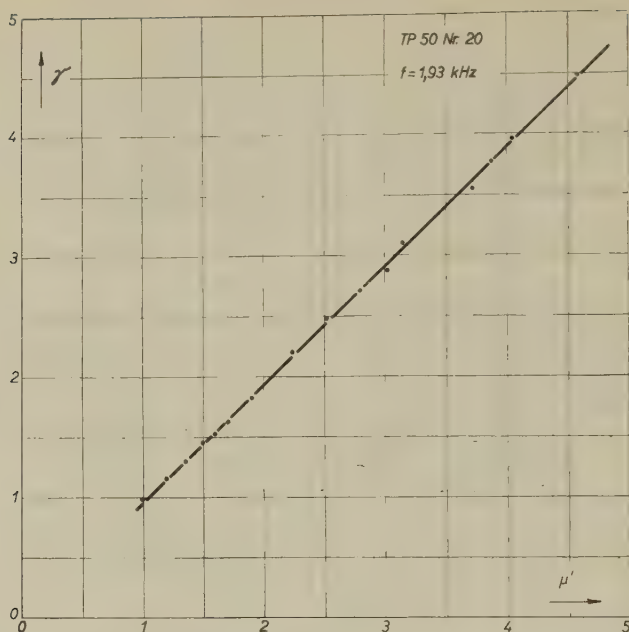


Fig. 11

Schwankungsfaktor des Diodenstromes  $\gamma$  als Funktion des Schwankungsfaktors der auf die idealisierte Diode auftreffenden Strahlung  $\mu'$ .  
 Punkte: Messwerte. Gerade: Regressionsgerade.

### c) Fehlergrenzen

Im folgenden soll der grösstmögliche Fehler bei der Messung von  $\gamma(\mu')$  bestimmt werden.

Bei der Beurteilung der Messung  $\gamma(\mu')$  vernachlässigen wir die zufälligen Fehler bei der Ablesung einer Rauschgrösse ( $\overline{i^2}$ , bzw.  $\overline{u_m^2}$ ), welche durch Verstärkungsschwankungen in der Rauschmessanlage, Ablesefehler usw. bedingt sind. Die einzelnen Messpunkte in Figur 11 sind voneinander unabhängig aufgenommen worden und streuen nur wenig um die zwischendurch gezeichnete Regressionsgerade, so dass dieselbe als frei von diesen Fehlern betrachtet werden kann.

Die Messung einer Rauschgrösse ( $\overline{i^2}$ , bzw.  $\overline{u_m^2}$ ) ist durch Fehler in der Eichung, der Abschwächer im Rauschverstärker und des Anzeigeinstrumentes mit einem grösstmöglichen Fehler vom  $\pm 2,8\%$  behaftet.

Der Messfehler von  $I_p$  beträgt  $\pm 1\%$ .

Daraus bestimmt sich der grösstmögliche Fehler von  $\gamma$  zu  $\pm 3,8\%$ .

Der grösstmögliche Fehler des Wertes  $(\mu' - 1)$  summiert sich aus den Fehlern von

$$\frac{\delta I^2}{I^2} : \pm 2 \%$$

$$I_p : \pm 1 \%$$

$$B : \pm 0,5\%$$

$$\overline{u_m^2} : \pm 2,8\%$$

auf den Wert  $\pm 6,3\%$ .

Den grösstmöglichen Fehler der Tangente  $d\gamma/d\mu'$  erhält man durch Summierung der Fehler von  $\gamma$  und von  $(\mu' - 1)$ , mit Ausnahme der je 2,8% Fehler der Rauschmessanlage, welche auf  $\gamma$  und auf  $(\mu' - 1)$  in derselben Richtung wirken. Man erhält  $\pm 4,5\%$ .

Die in Figur 11 dargestellten Messresultate betragen daher unter Berücksichtigung dieser grösstmöglichen Fehler:

$$\gamma (\mu' = \mu = 1) = 0,97 \pm 0,04,$$

$$\frac{d\gamma}{d\mu'} = 0,985 \pm 0,045.$$

In Figur 12 ist das Gebiet, innerhalb welchem die wahren Messwerte liegen, schraffiert gezeichnet.

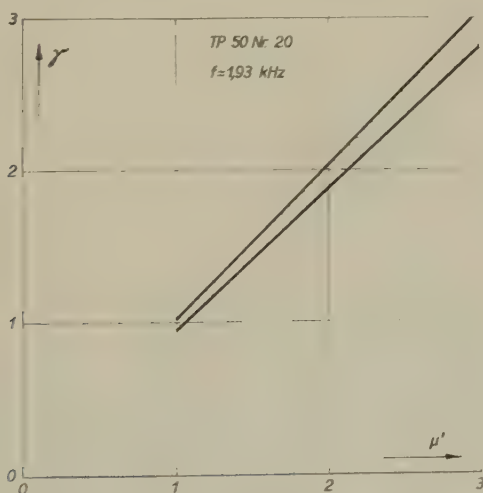


Fig. 12

Darstellung der Messung  $\gamma(\mu')$  unter Berücksichtigung der grössten möglichen Messfehler. Die wahren Werte liegen innerhalb des schraffierten Gebietes.

Anhand von Gleichung (7) lässt sich daraus der Schwankungsfaktor  $\mu$  der emittierten Strahlung bestimmen:

$$\mu = \frac{\alpha + \gamma - 1}{\alpha}.$$

Für  $\alpha$  ist der gewogene Mittelwert  $\overline{\alpha^*} = 0,29 \pm 0,02$  einzusetzen. Man erhält

$$\mu = 0,90.$$

Zur Bestimmung des grössten möglichen Fehlers wählt man den kleinsten möglichen Wert  $\overline{\alpha^*} = 0,27$  und setzt diesen ein in

$$\Delta\mu = \frac{1}{\overline{\alpha^*}} \Delta\gamma = 0,14.$$

Der wahre Wert von  $\mu$  liegt daher in den Grenzen

$$\mu = 0,90 \pm 0,14.$$

#### 4. Diskussion der Messresultate

##### 4.1. Aussagekraft des Experimentes

Die wesentliche Aussage der Messungen mit rauschmoduliertem Licht ist folgende: Wenn wir die nach A. EINSTEIN berechneten Schwankungen der Strahlung durch Modulation vergrössern, so vergrössern sich auch die Schwankungen des Photostromes. Das heisst,  $\gamma$  ist wirklich von  $\mu$  abhängig, und zwar linear. Die Photodiode ist also geeignet zur Untersuchung der spontanen Photonenschwankungen.

Wenn es möglich wäre, aus den Messresultaten unmittelbar Gleichung (10) zu bestätigen, ohne irgendwelche Annahmen über die Natur der Strahlung zu treffen, so wäre das nach A. EINSTEIN (siehe <sup>12</sup>), S. 311) ein Beweis dafür, dass die Strahlung aus Lichtquanten der Grösse  $h\nu$  besteht und gleichzeitig Wellencharakter hat. Denn Gleichung (10) ist ein Grenzfall der allgemeinen Gleichung (2), bzw. (17) in <sup>1</sup>) und umfasst nur den Term, welcher von den Schwankungen der als voneinander unabhängig gedachten Lichtquanten herrührt. Der zweite Term dieser Gleichung, von den Interferenzschwankungen herrührend, ist schon häufig bestätigt worden innerhalb der aus einer unabhängigen Temperaturmessung sich ergebenden Fehlergrenzen.

Es ist schwierig, aus den Messergebnissen die Gültigkeit der Gleichung von A. EINSTEIN direkt zu beweisen, weil wir zur Auswertung der Messresultate eine Gleichung brauchen, welche den Zusammenhang zwischen den Schwankungen der auftreffenden Strahlung und den Schwankungen des Signales am Ausgang des Photoempfängers gibt, nämlich Gleichung (7). Die Ableitung von Gleichung (7), in <sup>1</sup>) beschrieben, beruht aber auf der Annahme, dass die auftreffende Strahlung aus Quanten der Grösse  $h\nu$  besteht. Nur dann hat die Definition des Quantenwirkungsgrades einen unmittelbaren Sinn, und nur dann ist die Gültigkeit von Gleichung (7) evident.

Die Gültigkeit der Theorie, wonach die Temperaturstrahlung aus Quanten der Grösse  $h\nu$  besteht, ist aber in der Physik schon häufig be-



stätigt worden. Nach der Ansicht von W. PAULI<sup>13)</sup> liegt das Interesse an der vorliegenden Untersuchung darin, zu zeigen, dass die Quantentheorie sich nicht nur global bestätigen lässt, wie z. B. durch die Überprüfung des Planck'schen Strahlungsgesetzes, sondern auch im Detail. Die Untersuchungen sollen zeigen, ob die Quantentheorie nicht nur die richtigen Mittelwerte der Strahlung zu beschreiben vermag, sondern auch ihre spontanen Schwankungen, wie sie A. EINSTEIN 1912 formuliert hat. Das kommt auf eine Bestätigung der Bose-Statistik für die Lichtquanten hinaus.

Wir gehen also von der Voraussetzung aus, dass die gemessene Strahlung aus Quanten der Grösse  $h\nu$  besteht, und diskutieren das Ergebnis der Rauschmessungen mit rauschmodulierter Strahlung, unter Berücksichtigung der Messungen über die Eigenschaften der Photodiode. Da die Kenntnis der Grösse  $h\nu$  den Zusammenhang zwischen der aufmodulierten Schwankung  $\bar{p}_m^2$  und dem Schwankungsfaktor  $\mu_m$  gemäss Gleichung (17) in <sup>1)</sup> gibt, so liefert das Experiment eine Bestätigung der an sich evidenten Gleichung (7) im Gebiet  $\gamma \geq 1$ .

Lassen wir die aufmodulierten Schwankungen und damit  $\mu_m$  gegen Null gehen, so geht der gemessene Wert  $\gamma$  gegen Eins. Das gilt unabhängig vom Wert  $\alpha$ , sowohl für Photodioden mit sehr schlechtem Quantenwirkungsgrad als auch für die vorliegende mit  $\bar{\alpha}^* = 0,29$ . Dieses Verhalten ist nur erklärlich durch die Annahme, dass die durch die Emission bedingten Schwankungen, durch  $\mu_q$  beschrieben, dem Einstein'schen Gesetz gehorchen, d. h.  $\mu_q = 1$ . Besonders bei Extrapolation auf den Grenzfall, wo  $\alpha = 1$ , ist diese Folgerung zwingend. Mit der Kenntnis, dass  $\mu = \mu_q = 1$  ist für die nichtmodulierte Strahlung, ist durch diese Messung auch Gleichung (7) im ganzen Gebiet  $\gamma \geq 1$  bestätigt worden.

#### 4.2. Folgerungen aus den Messungen

Nach den dargelegten Überlegungen lässt sich daher aus den Messungen (Messungen mit rauschmoduliertem Licht, ergänzt durch die Messungen über die Eigenschaften der Photodiode) folgendes schliessen:

Die Gleichung von A. EINSTEIN und H. A. LORENTZ über die spontanen Schwankungen der Temperaturstrahlung ist bestätigt worden für den Fall der von einer Wolframbandlampe mit der Temperatur  $T = 2260^\circ\text{K}$  emittierten und von einer Germanium-Photodiode registrierten Strahlung, bei der mittleren Messfrequenz  $f = 1,93\text{ kHz}$  und der Bandbreite  $\Delta f = 92\text{ Hz}$ . Dabei wurde der Schwankungsfaktor  $\mu$  bestimmt zu  $\mu = 0,90 \pm 0,14$ . Der erwartete Wert  $\mu = 1$  liegt innerhalb der Fehlergrenzen, aber hart am Rande. Es ist unwahrscheinlich, dass sich alle unabhängigen Fehler in derselben Richtung summieren. Wahrscheinlicher ist, dass der Schwankungsfaktor  $\mu$  der von der Bandlampe emittierten

Strahlung sich von dem der idealen Hohlraumstrahlung unterscheidet, oder dass die verwendete Photodiode doch nicht streng genug dem für die Rauschtheorie verwendeten Modell entspricht. Der Frequenzgang des Rauschstromes entspricht ohnehin nicht genau dem Frequenzgang bei moduliertem Licht. Daher kann es ein nicht abgeklärter Diodeneffekt sein, dass  $\gamma = 0,97$  und nicht  $1,0$  beträgt bei  $\mu_m = 0$ .

Gleichbedeutend mit der Bestätigung der Einstein'schen Gleichung ist die Aussage, dass diese Messung eine neue Bestimmung der Grösse  $h\nu$  ist, da  $h\nu$  in Gleichung (10) vorkommt, mit derselben Messgenauigkeit wie bei der Bestimmung von  $\mu$ .

Für die Elektrotechnik liefert diese Arbeit die Grundlage für eine Rauschtheorie der Photodiode und die Anregung, das Ersatzschaltbild der Photodiode zu verbessern.

Wenn der Zusammenhang zwischen  $\mu$  und  $\gamma$  einer Photodiode überprüft ist, lassen sich mit dieser Photodiode auch Temperaturmessungen an sehr heissen Strahlern durchführen. Im Rayleigh-Gebiet ist  $\mu = f(T)$  und damit auch  $\gamma = f(T)$ .

Die obigen Arbeiten wurden durch mehrere Kredite des Schweizerischen Nationalfonds für wissenschaftliche Forschung ermöglicht. Hierfür sprechen die Autoren ihren besten Dank aus.

### Literaturverzeichnis

- <sup>1)</sup> SPESCHA, G. A., STRUTT M. J. O., Theoretische Überlegungen zur experimentellen Bestimmung der spontanen Photonenschwankungen. *Helv. Phys. Acta* 33, 53 (1960).
- <sup>2)</sup> GOUCHER, F. S., The photon yield of electron-hole pairs in germanium. *Phys. rev.* 78, 816 (1950).
- <sup>3)</sup> GUGGENBÜHL, W., Beiträge zur Kenntnis des Halbleiterrauschens mit besonderer Berücksichtigung von Kristalldioden und Transistoren. Diss. ETH., Nr. 2515 (Zürich 1955).
- <sup>4)</sup> GUGGENBÜHL, W., und STRUTT, M. J. O., Experimentelle Bestätigung der Schottkyschen Rauschformeln an neueren Halbleiter-Flächendioden im Bereich des weissen Spektrums. *AEUe*, 9, 103–108 (1955).
- <sup>5)</sup> GUGGENBÜHL, W., und STRUTT, M. J. O., Halbleiter-Kontaktgeräte (Halbleiterdioden und Transistoren), 1. Bd., Theorie und Eigenschaften. (Birkhäuser, Basel). Im Erscheinen.
- <sup>6)</sup> SAWYER, D. E., und REDIKER, R. H., Narrow base germanium photodiodes. *Proc. IRE*, 46, 1122–1130 (1958).
- <sup>7)</sup> STRUTT, M. J. O., Transistoren. Hirzel, Zürich 1954.
- <sup>8)</sup> Slocum, A., und SHIVE, J. N., Shot dependence of  $p$ - $n$ -junction phototransistor noise. *Journ. appl. Phys.* 25, 406 (1954).
- <sup>9)</sup> ZIEL, A. VAN DER, und BECKING A. G. T., Theory of junction-diode and junction-transistor noise. *Proc. IRE*, 46, 589–594 (1958).
- <sup>10)</sup> SPESCHA, G. A., Experimentelle Untersuchungen über spontane Photonenschwankungen. Diss. ETH, Nr. 2952, Zürich 1959.
- <sup>11)</sup> VOS, J. C. DE, The emissivity of tungsten ribbon. Diss., Amsterdam 1953.
- <sup>12)</sup> FÜRTH, R., Über Strahlungsschwankungen nach der Lichtquantenstatistik, *Z. Phys.* 50, 310–318 (1928).
- <sup>13)</sup> Unterredung zwischen W. PAULI, R. JOST und dem zweitgenannten Autor im Jahre 1955.

# Theory of the Magnetic Susceptibility of Crystals

by **C. P. Enz**

Physikalisches Institut der ETH, Zürich

*Dem Andenken von M. R. Schafroth gewidmet*

(15. VIII. 1959)

*Zusammenfassung.* Es wird ein Ausdruck für die feldunabhängige magnetische Suszeptibilität von Elektronen in einem periodischen Potential nach einer neuen Methode abgeleitet. Vergleichsweise werden die in der Literatur existierenden Methoden kurz besprochen. Das Resultat lässt sich leicht für die beiden Näherungen fast freier und stark gebundener Elektronen spezialisieren, in welchen eine einfache Interpretation möglich ist.

## 1. Introduction

At the Varenna summer school 1956 a new method for treating the problem of the field independent magnetic susceptibility of electrons in a periodic potential was briefly reported<sup>1)</sup>. The present paper contains a detailed evaluation of this method. Simultaneously the same problem has been treated again by HEBBORN and SONDHEIMER<sup>2)</sup>\*). Since we feel that our method gives some insight into the problem not shared by the earlier treatments of PEIERLS<sup>3)</sup>, ADAMS<sup>4)</sup>, WILSON<sup>5)</sup> and also of ref. 2 we decided to publish this work.

As was mentioned in ref. 1 the motivation for this investigation was to understand the rather anomalous temperature dependence of the susceptibility experimentally found for many semiconductors. We will not, however, enter into this question here since a separate paper is devoted to the problem of the temperature dependence of the susceptibility<sup>6)</sup>.

In order to compare our method with those already existing in the literature<sup>3-5)</sup> we shall discuss some of the main points of the earlier treatments.

An important feature in PEIERLS fundamental paper<sup>3)</sup> is the use of an effective Hamiltonian  $E_{op}$  related to the true one-electron Hamiltonian by an equivalence theorem. Peierls worked out this theorem in tight

---

\*) This author is indebted to Dr. SONDHEIMER for sending him a preprint.

binding approximation only. But its validity is not restricted to this approximation. The effective Hamiltonian is of the form

$$E_{op} = E(\mathbf{k}_{op}) \quad (1.1)$$

where  $E(\mathbf{k})$  is the energy of an eigenstate with wave vector  $\mathbf{k}$  of the true Hamiltonian including the perturbation by the magnetic field  $H$  (assumed in the  $z$ -direction) and  $\mathbf{k}_{op}$  is a rather complicated operator obeying the commutation relation

$$\hbar^2[k_{op,x}, k_{op,y}] = -\frac{\hbar}{i} \frac{e}{c} H. \quad (1.2)$$

For vanishing magnetic field  $E(\mathbf{k})$  is a single energy band of the crystal, while for  $H \neq 0$  it includes contributions from the other bands. Apart from these contributions in  $E(\mathbf{k})$  however, Peierls'  $E_{op}$  is essentially a one band model and the equivalence theorem therefore only approximate. Some implications of interband effects in a magnetic field have been discussed by HARPER<sup>7</sup>).

Another equivalence theorem well known in solid state theory is the effective mass theory which was originally developed for electrostatic perturbations<sup>8</sup>) and extended to the magnetostatic case by LUTTINGER<sup>9</sup>). Luttinger's version for a constant magnetic field is again of the form (1.1,2) but now  $E(\mathbf{k})$  represents an unperturbed energy band  $E_n(\mathbf{k})$  and  $\mathbf{k}_{op}$  the kinetic momentum  $\mathbf{p} - e/c \mathbf{A}$ . If one replaces in Peierls' paper his effective Hamiltonian by that of Luttinger a closer examination shows that one obtains the familiar Landau-Peierls term  $\chi_3$  while the other two terms  $\chi_1$  and  $\chi_2$  are missing.

In a more recent paper KJELDAAS and KOHN<sup>10</sup>) have applied a generalization of LUTTINGER and KOHN's version of the effective mass theory<sup>8</sup>) to the problem of the magnetic susceptibility. In this version the effective mass approximation consists in neglecting terms of higher than second order in a power series expansion in  $\mathbf{k} - \mathbf{k}_0$  where  $\mathbf{k}_0$  is the wave vector at the minimum of the energy band in consideration. In the case of a magnetic perturbation this leads to Luttinger's effective Hamiltonian  $E_n(\mathbf{p} - e/c \mathbf{A})$  in second order, as shown in ref. 8. The generalization of KJELDAAS and KOHN consists in taking into account fourth order terms in the expansion in  $\mathbf{k} - \mathbf{k}_0$  (they put  $\mathbf{k}_0 = 0$ ) which leads to an effective Hamiltonian of the form

$$E_{op} = E_n\left(\mathbf{p} - \frac{e}{c} \mathbf{A}\right) + R\left(\mathbf{p} - \frac{e}{c} \mathbf{A}\right) \quad (1.3)$$

taken in fourth order in  $\mathbf{k}$ . As stated above, the first term of (1.3) gives rise (to any order in  $\mathbf{k}$ ) to Peierls'  $\chi_3$ . The contribution of the remainder  $R$  is shown by the authors to coincide, in tight binding approximation,



with the atomic diamagnetism  $\chi_1$  of Peierls. This shows that Kjeldaas and Kohn's effective Hamiltonian (1.3), although useful in certain applications, gives no improvement over Peierls' original theory.

Such an improvement in the spirit of an equivalence theorem has been achieved by ADAMS<sup>4)</sup>, making use of his multiband formulation of the effective mass theory<sup>11)</sup> which is rigorous in principle. As result Adams gets, in addition to the Landau-Peierls term, two new terms of exceedingly complicated structure, containing interband effects not present in Peierls'  $\chi_1$  and  $\chi_2$ . The basic quantities in Adams' multiband formulation of the effective mass theory turn out, after closer inspection<sup>12)</sup>, to be the matrix elements between Bloch states of the operator  $\mathbf{p}$  and of a certain part of  $\mathbf{x}$  having the periodicity of the lattice (see appendix A). This suggests quite generally that a straightforward use of the Bloch representation would eliminate the extra complications inherent in any equivalence theorem. Our method is guided by this observation.

Another method which follows this mode of approach by Bloch functions instead of using an equivalent Hamiltonian is the density matrix formalism of WILSON<sup>5)</sup>. This formalism is very powerful in the case of free electrons because it does not make use of perturbation theory in the field  $H$  (and therefore accounts for the de Haas-van Alphen effect). For electrons in a periodic potential however, perturbation theory is indispensable and Wilson's method is less direct. A complete formula for the field independent susceptibility although obtainable in principle with this method has not been given by Wilson because of its considerable complexity. This has been achieved only recently by HEBBORN and SONDHEIMER<sup>2)</sup>. Much of the complications in Wilson's method are due to the explicit use of the Bloch wave functions which also make the result rather difficult to interpret.

In our method a general formula expressing the susceptibility in terms of matrix elements in Bloch representation is derived in section 2 (see also ref. 1). In order that these matrix elements have good mathematical properties the choice of an infinite normalisation volume is of importance. Some care is necessary however with the definition of the diagonal sum (trace) when the wave vector  $\mathbf{k}$  varies continuously. At this point an approximation is introduced which consist in treating certain almost diagonal operators as if they were rigorously diagonal. (This point was not clearly realized in ref. 1). Furthermore the well known difficulty of having a constant magnetic field in infinite space needs some discussion. This difficulty is shown however, to be of harmless nature so far as the susceptibility is concerned. In fact, no singularities occur other than  $\delta$ -functions in  $\mathbf{k}$  and derivatives thereof. In appendix A it is shown that these singular functions are easily 'regularized' by going over to a magne-



tized region of finite extension. No use of this regularisation is made however since, starting from the general susceptibility formula, it is an easy task to eliminate the singularities by partial integrations over  $\mathbf{k}$ . This is done in section 3. Finally with the help of relations between matrix elements derived in appendix A some further simplifications are made in section 4 and the result is written as a sum of six terms. The most important contributions are the Landau-Peierls diamagnetism  $\chi_P$  (Peierls'  $\chi_3$ ), the atomic diamagnetism  $\chi_a$  (Peierls'  $\chi_1$ ), a Langevin-Debye type paramagnetism  $\chi_L$  and a van Vleck type term  $\chi_V$ . The identification of the last three terms is easily obtained by passing to the limit of tightly bound electrons where all other contributions disappear. In the limit of nearly free electrons, on the other hand, the susceptibility is given by  $\chi_P$  alone.

Apart from  $\chi_P$  which is determined entirely by the energy band structure, all other terms additionally depend upon the matrix elements of  $\mathbf{p}$  and of the periodic part of  $\mathbf{x}$  mentioned above. Clearly, the relations existing between these matrix elements are not sufficient to eliminate all matrix elements in favour of the energy band structure. These matrix elements are identical with the basic quantities in Adams' result and also with the integrals over Bloch functions used by Wilson and by Hebborn and Sondheimer (we use the same notation as these authors so far as possible).

As usual this paper is based upon the one-electron picture and electron spin is neglected (which means that spin-orbit coupling is neglected, see ref. 1). No symmetries other than those already existing in this framework – namely the lattice periodicity and the time reversal symmetry – are assumed. The implications of some symmetries (e. g. existence of an inversion centre in the crystal) are studied in appendix B.

## 2. Outline of the Formalism

In a small magnetic field  $H$  the free energy  $\Phi$  and thermodynamic potential  $\Omega$  of crystal electrons are, per unit volume,

$$\Phi - N\zeta = \Omega = \Omega_0 - M_0 H - \frac{1}{2} \chi \cdot H^2 + \dots \quad (2.1)$$

where  $\chi$  is the field independent magnetic susceptibility and  $M_0$  the permanent magnetic moment, which is zero except for ferromagnetic substances.  $N$  is the number of electrons per unit volume and  $\zeta$  the Fermi energy. The thermodynamic potential  $V \cdot \Omega$  for a crystal of volume  $V$  may be written in the usual way as a trace

$$\Omega = \frac{2}{V} \cdot \text{Trace } F(\mathfrak{H}) \quad (2.2)$$

where  $\mathfrak{H}$  is the Hamiltonian of an electron moving in a periodic potential  $V(\mathbf{x})$  and in a magnetic field  $\mathbf{H} = \text{rot } \mathbf{A}$  ( $\text{div } \mathbf{A} = 0$ )

$$\mathfrak{H} = \frac{1}{2m} (\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2 + V = \mathfrak{H}_0 + \mathfrak{H}'; \quad \mathfrak{H}_0 = \frac{p^2}{2m} + V \quad (2.3)$$

$$\mathfrak{H}' = -\frac{e}{m} \mathbf{A} \cdot \mathbf{p} + \frac{e^2}{2m} \mathbf{A}^2. \quad (2.3)'$$

(We put  $\hbar = c = 1$  in this paper.) The factor 2 in eq. (2.2) accounts for the degeneracy of the electron spin which is neglected in  $\mathfrak{H}$ .  $F$  is the function

$$F(E) \equiv -kT \log \left[ 1 + \exp \left( -\frac{E - \xi}{kT} \right) \right] \quad (2.4)$$

characteristic of Fermi-Dirac statistics.

Eq. (2.2) is evidently independent of the choice of the representation, which implies immediately the gauge invariance of  $\Omega$ . Indeed, with the gauge transformation

$$\tilde{\psi}(\mathbf{x}) = e^{ie\mathbf{A}(\mathbf{x})} \psi(\mathbf{x}); \quad \tilde{\mathbf{A}}(\mathbf{x}) = \mathbf{A}(\mathbf{x}) + \frac{\partial \Lambda}{\partial \mathbf{x}}$$

$\psi$  being any wave function, it follows that

$$\tilde{\psi}^*(\mathbf{x}) \cdot \tilde{\mathfrak{H}} \tilde{\psi}(\mathbf{x}) = \psi^*(\mathbf{x}) \cdot \mathfrak{H} \psi(\mathbf{x})$$

where  $\tilde{\mathfrak{H}}$  is the Hamiltonian (2.3) with  $\mathbf{A}$  replaced by  $\tilde{\mathbf{A}}$ .

Since  $F(z)$  is a regular function in the neighbourhood of the real axis and vanishes exponentially for large positive  $z$  we may apply Cauchy's formula as indicated in ref. 1,

$$\Omega = \frac{1}{2\pi i} \oint dz F(z) \cdot \frac{2}{V} \text{Trace} (z - \mathfrak{H})^{-1} \quad (2.5)$$

where the contour encloses all eigenvalues of  $\mathfrak{H}$ .  $(z - \mathfrak{H})^{-1}$  is then written as a formal expansion in the perturbation  $\mathfrak{H}'$ .

$$\left. \begin{aligned} (z - \mathfrak{H})^{-1} &= (z - \mathfrak{H}_0)^{-1} + (z - \mathfrak{H}_0)^{-1} \mathfrak{H}' (z - \mathfrak{H}_0)^{-1} + \\ &+ (z - \mathfrak{H}_0)^{-1} \mathfrak{H}' (z - \mathfrak{H}_0)^{-1} \mathfrak{H}' (z - \mathfrak{H}_0)^{-1} + \dots = \\ &= (z - \mathfrak{H}_0)^{-1} - \frac{e}{m} (z - \mathfrak{H}_0)^{-1} \mathbf{A} \cdot \mathbf{p} (z - \mathfrak{H}_0)^{-1} + \\ &+ \frac{e^2}{2m} (z - \mathfrak{H}_0)^{-1} \mathbf{A}^2 (z - \mathfrak{H}_0)^{-1} + \\ &+ \frac{m^2}{e^2} (z - \mathfrak{H}_0)^{-1} \mathbf{A} \cdot \mathbf{p} (z - \mathfrak{H}_0)^{-1} \mathbf{A} \cdot \mathbf{p} (z - \mathfrak{H}_0)^{-1} + \dots \end{aligned} \right\} \quad (2.6)$$

It is now natural to choose the Bloch representation defined by  $\mathfrak{H}_0$ ,

$$\mathfrak{H}_0 |n \mathbf{k}\rangle = E_n(\mathbf{k}) \cdot |n \mathbf{k}\rangle \quad (2.7)$$

where the energy bands labelled by  $n$  may still be degenerate. For the moment we assume a finite normalization volume  $V$  and periodic boundary conditions so that

$$(n \mathbf{k} | n' \mathbf{k}') = \delta_{nn'} \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}$$

and the  $\mathbf{k}$  form a discrete set of points extending over the reduced Brillouin zone.

The reason for making the assumption of a finite  $V$  is to give a precise meaning to the trace in eq. (2.2), which now assumes the simple form

$$\Omega = \frac{2}{V} \sum_n \sum_{\mathbf{k}} (n \mathbf{k} | F(\mathfrak{H}) | n \mathbf{k})$$

There is however a difficulty with this assumption in the case of a homogeneous field,  $\mathbf{H} = (0, 0, H)$ , say, or in an appropriate gauge,

$$\mathbf{A} = \frac{H}{2} \cdot (-x_2, x_1, 0) \quad (2.8)$$

Indeed, the coordinates  $x_j$  do not exist, strictly speaking, as operators in a finite system with periodic boundary conditions. We may therefore assume for a moment that  $\mathbf{H}$  is constant only in the interior of a region  $U$  situated within  $\Gamma$ , but that  $\mathbf{A}$  goes to zero at the boundary of  $U$ . To eliminate the boundary effects thereby introduced we shall afterwards go to the double limit  $\Gamma \rightarrow \infty$  and  $U \rightarrow \infty$ , which from the formal point of view is the appropriate situation.

The first limit,  $\Gamma \rightarrow \infty$ , is obtained by the usual replacements

$$\begin{aligned} V/(2\pi)^3 \cdot | n \mathbf{k} \rangle &\rightarrow | n \mathbf{k} \rangle \\ (V/(2\pi)^3) \cdot \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} &\rightarrow \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}') \\ ((2\pi)^3/V) \cdot \sum_{\mathbf{k}} &\rightarrow \int d^3 k. \end{aligned}$$

In the last line integration is to extend over the reduced Brillouin zone. The new normalization is

$$(n \mathbf{k} | n' \mathbf{k}') = \delta_{nn'} \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}') \quad (2.9)$$

It then follows that for any function  $f(\mathbf{k})$

$$\sum_{\mathbf{k}} | n \mathbf{k} \rangle f(\mathbf{k}) (n \mathbf{k} | \rightarrow \int d^3 k | n \mathbf{k} \rangle f(\mathbf{k}) (n \mathbf{k} | \quad (2.10)$$

and for any diagonal operator  $O$

$$\left. \begin{aligned} \frac{2}{V} \text{Trace } O &= \frac{2}{V} \sum_n \sum_{\mathbf{k}} (n \mathbf{k} | O | n \mathbf{k}) = \\ &= \frac{2}{V} \sum_n \sum_{\mathbf{k}} \sum_{\mathbf{k}', |\mathbf{k}' - \mathbf{k}| < \varepsilon} (n \mathbf{k} | O | n \mathbf{k}') \rightarrow \frac{1}{4\pi^3} \sum_n \int d^3 k \int_{|\mathbf{k}' - \mathbf{k}| < \varepsilon} d^3 k' (n \mathbf{k} | O | n \mathbf{k}') \end{aligned} \right\} \quad (2.11)$$

where  $\varepsilon$  is arbitrarily small. The approximation introduced in this paper is to apply (2.11) for operators which are not rigorously diagonal in  $\mathbf{k}$  but contain first or second derivatives of  $\delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}')$ .\*).

We have now to make a few remarks concerning the second limit,  $U \rightarrow \infty$ , since, as is seen from (2.8) and from (3.2) below, the perturbation  $\mathfrak{H}'$  is unbounded in  $\mathbf{x}$  and the matrix elements of  $\chi_j$  contain a singularity  $\partial/\partial k'_j \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}')$ . Although such singular expressions are easily treated by partial integration and lead to a finite result for each term in the trace of the expansion (2.6) a justification of this procedure may be desirable. It is easily obtained with the device of a finite magnetized region  $U$  introduced above. In fact, it is shown in appendix A that the  $\delta$ -function contained in the matrix elements of  $\chi_j$  can be considered as the following limit (see eq. (A. 16))

$$\delta_{nn'} \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}') = \lim_{U \rightarrow \infty} \Delta_{nn'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') \quad (2.12)$$

where  $\Delta_{nn'}$  is a regular function in  $\mathbf{k}$  and  $\mathbf{k}'$  with a steep maximum at  $\mathbf{k} = \mathbf{k}'$ .

We would like to add a remark about the question of convergence of the perturbation theory, although in the present paper we are interested only in the first few coefficients of the perturbation expansion (2.6). It is clear from the properties of  $\mathfrak{H}'$  in the limit  $U \rightarrow \infty$  that perturbation theory ceases to be convergent in this limit. In fact, as is well known, the switching on of a homogenous magnetic field changes the character of the electronic states entirely in that closed orbits and discontinuities in the spectrum occur (see PEIERLS<sup>13</sup>, p. 151). On the other hand, for a finite extension  $U$  of the field there always exists a finite upper limit  $H_m$  of the field strength such that no closed orbits and no discontinuities in the spectrum exist and perturbation theory is therefore applicable. This means that in the case of a finite  $U$  a finite convergence radius proportional to  $H_m$  exists which goes to zero in the limit  $U \rightarrow \infty$ . The existence of each term in the trace of (2.6) in this limit indicates however that  $\Omega$  may be obtained as an asymptotic series in  $H$ .

---

\*) The rigorous procedure would be to keep the region  $U$  finite throughout the calculation, replacing  $\mathbf{A}$  by  $\varphi_U \cdot \mathbf{A}$  ( $\varphi_U$  is defined in appendix A).  $\mathfrak{H}'$  then contains only bounded operators and

$$\Omega - \Omega_0 = (2/U) \sum_n \int d^3k \langle n\mathbf{k} | F(\mathfrak{H}) - F(\mathfrak{H}_0) | n\mathbf{k} \rangle$$

is a rigorous definition. A closer examination of this formula shows that the corrections to the result of this paper are terms containing first and second derivatives of the quantity  $\Delta_{nn'}$  defined in (A.16), which remain finite as  $U$  goes to infinity.

We are now in a position to work in the double limit indicated above. Using (2.5, 7, 8) and the rules (2.10, 11), eq. (2.5) can be written as

$$\Omega = \Omega_0 + \frac{1}{2\pi i} \oint dz F(z) \frac{1}{4\pi^3} \left\{ -\frac{eH}{2m} \cdot \mu(z) + \left( \frac{eH}{2m} \right)^2 (\Delta(z) + \pi(z)) \right\} \quad (2.13)$$

with

$$\Omega_0 = \frac{1}{4\pi^3} \sum_n \int d^3k F(E_n(\mathbf{k}))$$

and

$$\left. \begin{aligned} \mu(z) &= \sum_n \int d^3k \int_{\varepsilon} d^3k' (z - E_n(\mathbf{k}))^{-1} (n\mathbf{k} | l_3 | n\mathbf{k}') \cdot (z - E_n(\mathbf{k}'))^{-1} \\ \Delta(z) &= \sum_n \int d^3k \int_{\varepsilon} d^3k' (z - E_n(\mathbf{k}))^{-1} \cdot (n\mathbf{k} | \frac{m}{2} (x_1^2 + x_2^2) | n\mathbf{k}') (z - E_n(\mathbf{k}'))^{-1} \\ \pi(z) &= \sum_n \sum_{n''} \int d^3k \int_{\varepsilon} d^3k' \int d^3k'' (z - E_n(\mathbf{k}))^{-1} \cdot (n\mathbf{k} | l_3 | n''\mathbf{k}'') (z - E_{n''}(\mathbf{k}''))^{-1} (n''\mathbf{k}'' | l_3 | n\mathbf{k}') \cdot (z - E_n(\mathbf{k}'))^{-1} \end{aligned} \right\} \quad (2.14)$$

Here  $l_3$  is the 3-component of angular momentum,

$$\mathbf{l} = \mathbf{x} \times \mathbf{p}$$

and an abbreviated notation for the integration over the small sphere  $|\mathbf{k} - \mathbf{k}'| < \varepsilon$  has been introduced. Comparing with (2.1) we have

$$\left. \begin{aligned} M_0 &= + \frac{1}{2\pi i} \oint dz F(z) \frac{1}{4\pi^3} \cdot \frac{e}{2m} \mu(z) \\ \chi &= - \frac{1}{2\pi i} \oint dz F(z) \frac{1}{2\pi^3} \left( \frac{e}{2m} \right)^2 (\Delta(z) + \pi(z)) \end{aligned} \right\} \quad (2.15)$$

Apart from notation and the neglect of spin the formula for  $\chi$  is the same as in ref. 1. The proof that  $M_0$  vanishes will be given in the next section.

### 3. Evaluation of $M_0$ and $\chi$

With the help of the expressions for the matrix elements of  $p_j, x_j$  ( $j = 1, 2, 3$ ) and  $l_3$  which follow from appendix A,

$$(n\mathbf{k} | p_j | n'\mathbf{k}') = P_{j,nn'}(\mathbf{k}) \cdot \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}') \quad (3.1)$$

$$(n\mathbf{k} | x_j | n'\mathbf{k}') = \delta_{nn'} \frac{1}{i} \frac{\partial}{\partial k_j} \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}') + X_{j,nn'}(\mathbf{k}) \cdot \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}') \quad (3.2)$$



$$\left. \begin{aligned} (n \mathbf{k} | l_3 | n' \mathbf{k}') &= P_{2,nn'}(\mathbf{k}') \cdot \frac{1}{i} \frac{\partial}{\partial k_1'} \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}') - \\ &- P_{1,nn'}(\mathbf{k}') \cdot \frac{1}{i} \frac{\partial}{\partial k_2'} \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}') + L_{3,nn'}(\mathbf{k}) \cdot \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}') \end{aligned} \right\} \quad (3.3)$$

$P_{j,nn'}$ ,  $X_{j,nn'}$ ,  $L_{3,nn'}$  being regular function of  $\mathbf{k}$ , the evaluation of (2.14) is straightforward. It is useful to introduce a matrix notation in the band index, calling  $E(\mathbf{k})$  the diagonal matrix with elements  $E_n(\mathbf{k})$  and using the symbol «tr» to designate trace formation with respect to  $n$ . Then with the help of (3.3) the quantity  $\mu(z)$  defined in (2.14) assumes the form

$$\mu(z) = \int_{\varepsilon} d^3 k \int d^3 k' \operatorname{tr} \left[ (z - E(\mathbf{k}))^{-1} \left\{ P_2(\mathbf{k}') \frac{1}{i} \left( \frac{\partial}{\partial k_1'} \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}') \right) - \right. \right. \\ \left. \left. - P_1(\mathbf{k}') \frac{1}{i} \left( \frac{\partial}{\partial k_2'} \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}') \right) + L_3(\mathbf{k}) \cdot \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}') \right\} (z - E(\mathbf{k}'))^{-1} \right]. \quad (3.4)$$

In the expression for  $\Delta(z)$  we first write, with the help of (A. 13)

$$(n \mathbf{k} | x_1^2 + x_2^2 | n' \mathbf{k}') = \sum_{n''} \int d^3 k'' \sum_{j=1,2} (n \mathbf{k} | x_j | n'' \mathbf{k}'') (n'' \mathbf{k}'' | x_j | n' \mathbf{k}').$$

Making use of (3.2) we obtain

$$\Delta(z) = \int_{\varepsilon} d^3 k \int d^3 k' \int d^3 k'' \sum_{j=1,2} \frac{m}{2} \operatorname{tr} \left[ (z - E(\mathbf{k}))^{-1} \cdot \right. \\ \cdot \left. \left\{ \frac{1}{i} \left( \frac{\partial}{\partial k_j''} \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}'') \right) + X_j(\mathbf{k}) \cdot \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}'') \right\} \cdot \right. \\ \cdot \left. \left\{ \frac{1}{i} \left( \frac{\partial}{\partial k_j'} \delta(\mathbf{k}'' - \mathbf{k}') \right) + X_j(\mathbf{k}'') \cdot \delta(\mathbf{k}'' - \mathbf{k}') \right\} (z - E(\mathbf{k}'))^{-1} \right] \quad (3.5)$$

Similarly we get for  $\pi(z)$

$$\pi(z) = \int_{\varepsilon} d^3 k \int d^3 k' \int d^3 k'' \operatorname{tr} \left[ (z - E(\mathbf{k}))^{-1} \cdot \right. \\ \cdot \left\{ P_2(\mathbf{k}'') \frac{1}{i} \left( \frac{\partial}{\partial k_1''} \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}'') \right) - P_1(\mathbf{k}'') \frac{1}{i} \left( \frac{\partial}{\partial k_2''} \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}'') \right) + \right. \\ \left. + L_3(\mathbf{k}) \cdot \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}'') \right\} (z - E(\mathbf{k}''))^{-1} \left\{ P_2(\mathbf{k}') \frac{1}{i} \left( \frac{\partial}{\partial k_1'} \delta(\mathbf{k}'' - \mathbf{k}') \right) - \right. \\ \left. - P_1(\mathbf{k}') \frac{1}{i} \left( \frac{\partial}{\partial k_2'} \delta(\mathbf{k}'' - \mathbf{k}') \right) + L_3(\mathbf{k}'') \delta(\mathbf{k}'' - \mathbf{k}') \right\} (z - E(\mathbf{k}'))^{-1} \right]. \quad (3.6)$$

The further procedure entails partial integrations to eliminate the derivatives of the  $\delta$ -functions. It is important that all surface integrals thereby introduced vanish. Indeed, these surface integrals always contain a  $\delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}')$  where the wave vector  $\mathbf{k}$  is an inner point of the domain of integration (which is either the reduced zone or the sphere  $\varepsilon$ ) whereas  $\mathbf{k}'$  moves about the boundary surface. (This argument may be put on firmer ground with the help of the 'regularized'  $\delta$ -function,  $\Delta_{nn'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}')$  of eq. (2.12), using standard procedures. We shall not enter into these details however.)

We begin with the evaluation of  $\mu(z)$ . Partial integration with respect to  $\mathbf{k}'$  yields

$$\mu(z) = \int d^3 k \int_{\epsilon} d^3 k' \operatorname{tr} \left[ (z - E(\mathbf{k}))^{-1} \left\{ -\frac{1}{i} \frac{\partial}{\partial k_1'} (P_2(\mathbf{k}') (z - E(\mathbf{k}'))^{-1}) + \right. \right. \\ \left. \left. + \frac{1}{i} \frac{\partial}{\partial k_2'} (P_1(\mathbf{k}') (z - E(\mathbf{k}'))^{-1}) + L_3(\mathbf{k}') \right\} \right] \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}').$$

Introducing the abbreviation

$$\frac{\partial}{\partial k_j} f(\mathbf{k}) \equiv f_{|j}$$

and using the matrix formula

$$\frac{\partial}{\partial k_j} (z - E(\mathbf{k}))^{-1} = (z - E)^{-1} E_{|j} (z - E)^{-1} \quad (3.7)$$

we get, after a cyclic permutation of factors in the trace,

$$\mu(z) = \int d^3 k \operatorname{tr} \left[ (z - E)^{-2} \left\{ -\frac{1}{i} P_{2|1} + \frac{1}{i} P_{1|2} - \right. \right. \\ \left. \left. - \frac{1}{i} P_2 \cdot (z - E)^{-1} E_{|1} + \frac{1}{i} P_1 \cdot (z - E)^{-1} E_{|2} + L_3 \right\} \right]. \quad (3.8)$$

Now since  $E(\mathbf{k})$  is a diagonal matrix,  $E_{|j}$  commutes with  $(z - E)^{-1}$ . Therefore the third and fourth term of the curled bracket of (3.8) are proportional to  $(-1/i) (P_2 E_{|1} - P_1 E_{|2})$  which according to (A. 8) is the hermitian conjugate of the matrix

$$A \equiv \frac{1}{i} (E_{|1} \cdot P_2 - E_{|2} \cdot P_1). \quad (3.9)$$

In the trace of eq. (3.8) only the diagonal elements of this matrix occur, which, however, vanish according to eq. (A.19'),

$$A_{nn} = 0, \quad \text{all } n \quad (3.9')$$

For the first two terms of the curled bracket in (3.8) we use the formula

$$-\frac{1}{i} (P_{2|1} - P_{1|2}) = L_3^+ - L_3 \quad (3.10)$$

which follows from eq. (A. 20) and the definitions (A. 15, 15'). (+denotes hermitian conjugation.) Then eq. (3.8) reduces to

$$\mu(z) = \int d^3 k \operatorname{tr} [(z - E)^{-2} L_3^+] = \sum_n \int d^3 k \left( \frac{\partial}{\partial E_n} (z - E_n)^{-1} \right) \cdot L_{3,nn}^+.$$

Going back to the expression (2.15) for  $M_0$  and making use of the property

$$L_{3,nn}^+ = L_{3,nn} \quad (3.10')$$

which follows from (3.10) with the help of (A. 19') we can write

$$M_0 = \frac{e}{2m} \cdot \sum_n \mu_n \quad (3.11)$$

with

$$\mu_n = \frac{1}{4\pi^3} \int d^3 k F'(E_n(\mathbf{k})) \cdot L_{3,nn}(\mathbf{k}) \quad (3.11')$$

$\mu_n$  is the permanent magnetic moment contributed by the  $n^{\text{th}}$  band in units of the Bohr magneton  $e/2m$ .

To show that all contributions  $\mu_n$  vanish, the time reversal symmetry ( $T$ -invariance) of  $\mathfrak{H}_0$  is essential. Indeed, with the help of (B.6) and (B.9), eq. (3.11') can also be written as

$$\mu_n = -\frac{1}{4\pi^3} \int d^3 k F'(E_n(-\mathbf{k})) \cdot L_{3,nn}^*(-\mathbf{k}).$$

Since the reduced Brillouin zone is invariant under the reflexion  $\mathbf{k} \rightarrow -\mathbf{k}$  and because of (3.10') it follows that

$$\mu_n = -\mu_n = 0; \quad \text{all } n. \quad (3.12)$$

It can be proven that exactly the same reasoning holds if the electron spin is included (i.e. spin-orbit coupling not neglected\*). Thus in a one-electron picture  $T$ -invariance (which for an electron with spin is expressed by  $\mathfrak{H}_0 = \omega \mathfrak{H}_0^* \omega^{-1}$  with  $\omega = -i\sigma_2$ ) quite generally implies the vanishing of a permanent magnetic moment so that the latter is always due to the simultaneous presence of more than one electron (exchange effects).

We turn now to the evaluation of  $\Delta(z)$  and  $\pi(z)$ . Since in these expressions derivation of a  $\delta$ -function occurs in two of the factors we want to make use of the identity

$$\frac{\partial}{\partial k_j} \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}'') = -\frac{\partial}{\partial k_j} \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}') \quad (3.13)$$

in order not to introduce new derivatives of  $\delta$ -functions by partial integration. (Note that according to (2.12) this rule may be considered as the limit  $U \rightarrow \infty$  of the equality of (A.17) and (A.17'). All formal manipulations are therefore entirely justified.) Then a first partial integration of (3.5) yields

$$\begin{aligned} \Delta(z) = & \int d^3 k \int_{\epsilon} d^3 k' \int d^3 k'' \frac{m}{2} \sum_{j=1,2} tr \left[ (z - E(\mathbf{k}))^{-1} \cdot \right. \\ & \cdot \left\{ -\frac{1}{i} \left( \frac{\partial}{\partial k_j} \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}'') \right) + X_j(\mathbf{k}) \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}'') \right\} \cdot \\ & \cdot \left\{ -\frac{1}{i} \left( \frac{\partial}{\partial k_j'} (z - E(\mathbf{k}'))^{-1} \right) + X_j(\mathbf{k}') (z - E(\mathbf{k}'))^{-1} \right\} \left. \right] \delta(\mathbf{k}'' - \mathbf{k}'). \end{aligned}$$

A further partial integration with respect to  $k_j$  leads to

$$\begin{aligned} \Delta(z) = & \frac{m}{2} \int d^3 k \sum_{j=1,2} tr \left[ \left\{ +\frac{1}{i} \frac{\partial}{\partial k_j} (z - E(\mathbf{k}))^{-1} + \right. \right. \\ & + (z - E(\mathbf{k}))^{-1} X_j(\mathbf{k}) \left. \right\} \left\{ -\frac{1}{i} \cdot \frac{\partial}{\partial k_j} (z - E(\mathbf{k}))^{-1} + \right. \\ & \left. \left. + X_j(\mathbf{k}) (z - E(\mathbf{k}))^{-1} \right\} \right] \end{aligned}$$

\*) This is also true if (2.11) is replaced by the rigorous definition.

or, with use of (3.7) and after a cyclic permutation of factors in the trace, to

$$\Delta(z) = \frac{m}{2} \int d^3 k \sum_{j=1,2} tr \left[ (z - E)^{-2} \left\{ \frac{1}{i} E_{|j} (z - E)^{-1} + X_j \right\} \cdot \left\{ -\frac{1}{i} (z - E)^{-1} E_{|j} + X_j \right\} \right].$$

Recalling that  $E(\mathbf{k})$  is a diagonal matrix and that therefore the diagonal elements of  $E_{|j} X_j - X_j E_{|j}$  vanish we get

$$\Delta(z) = \frac{m}{2} \int d^3 k \sum_{j=1,2} tr \left[ (z - E)^{-4} (E_{|j})^2 + (z - E)^{-2} (X_j)^2 \right]$$

and with use of the identity

$$(z - E_n)^{-s-1} = \frac{1}{s!} \cdot \frac{\partial^s}{\partial E_n^s} (z - E_n)^{-1} \quad (3.14)$$

$$\Delta(z) = \frac{m}{2} \int d^3 k \sum_{j=1,2} \sum_n \left[ \frac{1}{3!} \left( \frac{\partial^3}{\partial E_n^3} (z - E_n)^{-1} \right) \cdot (E_{n|j})^2 + \left( \frac{\partial}{\partial E_n} (z - E_n)^{-1} \right) \cdot (X_j^2)_{nn} \right]. \quad (3.15)$$

Similarly a first partial integration of  $\pi(z)$ , eq. (3.6), yields

$$\begin{aligned} \pi(z) = & \int d^3 k \int_{\varepsilon} d^3 k' \int d^3 k'' tr \left[ (z - E(\mathbf{k}))^{-1} \cdot \right. \\ & \cdot \left\{ -P_2(\mathbf{k}'') \frac{1}{i} \left( \frac{\partial}{\partial k_1} \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}'') \right) + P_1(\mathbf{k}'') \frac{1}{i} \left( \frac{\partial}{\partial k_2} \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}'') \right) + \right. \\ & + L_3(\mathbf{k}) \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}'') \} (z - E(\mathbf{k}''))^{-1} \left\{ -\frac{1}{i} \frac{\partial}{\partial k_1'} (P_2(\mathbf{k}') (z - E(\mathbf{k}'))^{-1}) + \right. \\ & \left. \left. + \frac{1}{i} \frac{\partial}{\partial k_2'} (P_1(\mathbf{k}') (z - E(\mathbf{k}'))^{-1}) + L_3(\mathbf{k}') (z - E(\mathbf{k}'))^{-1} \right\} \delta(\mathbf{k}'' - \mathbf{k}') \right] \end{aligned}$$

where we have made the replacement (3.13) in the first curled bracket. After a partial integration with respect to  $k_1$  and  $k_2$  we get

$$\begin{aligned} \pi(z) = & \int d^3 k tr \left[ \left\{ +\frac{1}{i} \left( \frac{\partial}{\partial k_1} (z - E(\mathbf{k}))^{-1} \right) \cdot P_2(\mathbf{k}) - \right. \right. \\ & - \frac{1}{i} \left( \frac{\partial}{\partial k_2} (z - E(\mathbf{k}))^{-1} \right) \cdot P_1(\mathbf{k}) + (z - E(\mathbf{k}))^{-1} \cdot L_3(\mathbf{k}) \left. \right\} \cdot \\ & \cdot (z - E(\mathbf{k}))^{-1} \left\{ -\frac{1}{i} \cdot \frac{\partial}{\partial k_1} (P_2(\mathbf{k}) (z - E(\mathbf{k}))^{-1}) + \right. \\ & \left. \left. + \frac{1}{i} \cdot \frac{\partial}{\partial k_2} (P_1(\mathbf{k}) (z - E(\mathbf{k}))^{-1}) + L_3(\mathbf{k}) (z - E(\mathbf{k}))^{-1} \right\} \right]. \end{aligned}$$

Making use of (3.7) this expression becomes, after a cyclic permutation of factors in the trace,

$$\begin{aligned} \pi(z) = \int d^3 k \operatorname{tr} \left[ (z - E)^{-2} \left\{ \frac{1}{i} E_{11} (z - E)^{-1} P_2 - \right. \right. \\ \left. \left. - \frac{1}{i} E_{12} (z - E)^{-1} P_1 + L_3 \right\} (z - E)^{-1} \left\{ -\frac{1}{i} P_{21} + \frac{1}{i} P_{12} - \right. \right. \\ \left. \left. - \frac{1}{i} P_2 (z - E)^{-1} E_{11} + \frac{1}{i} P_1 (z - E)^{-1} E_{12} + L_3 \right\} \right]. \end{aligned}$$

Commuting  $E_{ij}$  with  $(z - E)^{-1}$  we can make use of the definition (3.9) and the relation (3.10) to write

$$\begin{aligned} \pi(z) = \int d^3 k \operatorname{tr} \left[ (z - E)^{-2} \{ (z - E)^{-1} A + L_3 \} \cdot \right. \\ \left. \cdot (z - E)^{-1} \{ A^+ (z - E)^{-1} + L_3^+ \} \right] \end{aligned}$$

or, making another cyclic permutation in the trace,

$$\begin{aligned} \pi(z) = \int d^3 k \operatorname{tr} \left[ (z - E)^{-4} A (z - E)^{-1} A^+ + \right. \\ \left. + (z - E)^{-3} \{ A (z - E)^{-1} L_3^+ + L_3 (z - E)^{-1} A^+ \} + \right. \\ \left. + (z - E)^{-2} L_3 (z - E)^{-1} L_3^+ \right]. \end{aligned}$$

The trace, which consists in a double sum over  $n$  and  $n'$ , will now be divided into the parts with  $n = n'$  and  $n \neq n'$ . Using (3.9') and (3.14) we get

$$\left. \begin{aligned} \pi(z) = \int d^3 k \sum_n \frac{1}{2!} \left( \frac{\partial^2}{\partial E_n^2} (z - E_n)^{-1} \right) \cdot |L_{3,nn}|^2 + \\ + \int d^3 k \sum_n \sum_{n'}' \left[ \frac{1}{3!} \left( \frac{\partial^3}{\partial E_n^3} (z - E_n)^{-1} \right) \cdot |A_{nn'}|^2 + \right. \\ + \frac{1}{2!} \left( \frac{\partial^2}{\partial E_n^2} (z - E_n)^{-1} \right) \cdot \left\{ A_{nn'} L_{3,nn'}^* + L_{3,nn'} A_{nn'}^* \right\} + \\ \left. + \left( \frac{\partial}{\partial E_n} (z - E_n)^{-1} \right) \cdot |L_{3,nn'}|^2 \right] \cdot (z - E_n)^{-1} \end{aligned} \right\} \quad (3.16)$$

where  $\sum_{n'}'$  means summation over  $n' \neq n$ .

With these results (3.15, 16) the susceptibility formula (2.15) may be written in the form of eq. (7) of ref. 1,

$$\chi = - \left( \frac{e}{2m} \right)^2 \cdot \pi^{-3} \sum_n (D_n + P_n) \quad (3.17)$$



where  $D_n$  and  $P_n$ , as obtained from  $\Delta(z)$  and  $\pi(z)$  respectively, are given by

$$D_n = + \frac{m}{4} \int d^3 k \sum_{j=1,2} \left[ \frac{1}{3!} (E_{nj})^2 \cdot F'''(E_n) + (X_j^2)_{nn} \cdot F'(E_n) \right] \quad (3.17')$$

$$P_n = \left. \begin{aligned} & \frac{1}{2} \int d^3 k \frac{1}{2!} |L_{3,nn}|^2 \cdot F''(E_n) + \\ & + \frac{1}{2} \int d^3 k \sum_{n'} \left[ \frac{1}{3!} |A_{nn'}|^2 \cdot \frac{\partial^3}{\partial E_n^3} G(E_n, E_{n'}) + \right. \\ & + \frac{1}{2!} (A_{nn'} L_{3,nn'}^* + L_{3,nn'} A_{nn'}^*) \frac{\partial^2}{\partial E_n^2} G(E_n, E_{n'}) + \\ & \left. + |L_{3,nn'}|^2 \frac{\partial}{\partial E_n} G(E_n, E_{n'}) \right]. \end{aligned} \right\} \quad (3.17'')$$

In the last expression use has been made of Cauchy's formula

$$\frac{1}{2\pi i} \oint dz \frac{F(z)}{(z-E)(z-E')} = \frac{F(E) - F(E')}{E - E'} \equiv G(E, E') \quad (3.18)$$

#### 4. Final Result and Discussion

The main task of the last section was to eliminate the singularities  $\partial/\partial k_i \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}')$ . In eqs. (3.17', 17'') we arrived at well defined integrals extending over the reduced Brillouin zone. The expressions permit still some important simplifications. First we want to replace in  $P_n$  the derivatives of the function  $G(E_n, E_{n'})$  defined in (3.18) by derivatives of the simpler function  $F(E_n)$ . This is done with the help of the reduction formula

$$(E - E') \frac{\partial^s}{\partial E^s} G(E, E') = F^{(s)}(E) - s \cdot \frac{\partial^{s-1}}{\partial E^{s-1}} G(E, E'); s \geq 1.$$

Introducing the Fermi distribution function

$$f(E) = F'(E) = (1 + e^{(E-\xi)/kT})^{-1} \quad (4.1)$$

and using the abbreviation

$$B_{nn'} \equiv L_{3,nn'} - \frac{A_{nn'}}{E_n - E_{n'}}; n \neq n' \quad (4.2)$$

eq. (3.17'') may be written as

$$P_n = P_n^{(1)} + P_n^{(2)} + P_n^{(3)} + P_n^{(4)} + P_n^{(5)} \quad (4.3)$$

$$\begin{aligned}
 &\text{with} \quad \left. \begin{aligned}
 P_n^{(1)} &= \frac{1}{12} \int d^3 k \sum_{n'}' \frac{|A_{nn'}|^2}{E_n - E_{n'}} f''(E_n) \\
 P_n^{(2)} &= \frac{1}{4} \int d^3 k |L_{3,nn}|^2 \cdot f'(E_n) \\
 P_n^{(3)} &= \frac{1}{4} \int d^3 k \sum_{n'}' [|L_{3,nn'}|^2 - |B_{nn'}|^2] \cdot f'(E_n) \\
 P_n^{(4)} &= \frac{1}{2} \int d^3 k \sum_{n'}' \frac{|B_{nn'}|^2}{E_n - E_{n'}} \cdot f(E_n) \\
 P_n^{(5)} &= -\frac{1}{2} \int d^3 k \sum_{n'}' \frac{|B_{nn'}|^2}{E_n - E_{n'}} \cdot G(E_n, E_{n'})
 \end{aligned} \right\} \quad (4.3')
 \end{aligned}$$

Similarly we write eq. (3.17') as

$$D_n = D_n^{(1)} + D_n^{(2)} \quad (4.4)$$

$$\begin{aligned}
 &\text{with} \quad \left. \begin{aligned}
 D_n^{(1)} &= \frac{m}{24} \int d^3 k [(E_{n1})^2 + (E_{n2})^2] \cdot f''(E_n) \\
 D_n^{(2)} &= \frac{m}{4} \int d^3 k [(X_1^2)_{nn} + (X_2^2)_{nn}] \cdot f(E_n)
 \end{aligned} \right\} \quad (4.4')
 \end{aligned}$$

An important simplification is possible for  $P_n^{(1)}$ . From the definition (3.7) it follows that

$$\begin{aligned}
 \sum_{n'}' \frac{|A_{nn'}|^2}{E_n - E_{n'}} &= (E_{n1})^2 \sum_{n'}' \frac{P_{2,nn'} P_{2,nn'}^*}{E_n - E_{n'}} + \\
 &+ (E_{n2})^2 \sum_{n'}' \frac{P_{1,nn'} P_{1,nn'}^*}{E_n - E_{n'}} - E_{n1} E_{n2} \sum_{n'}' \frac{P_{2,nn'} P_{1,nn'}^* + P_{1,nn'} P_{2,nn'}^*}{E_n - E_{n'}}
 \end{aligned}$$

which according to (A. 8) and the sum rule (A. 21) may be expressed entirely in terms of the energy band structure,

$$\begin{aligned}
 \frac{1}{m^2} \sum_{n'}' \frac{|A_{nn'}|^2}{E_n - E_{n'}} &= \frac{1}{2} \left( E_{n11} - \frac{1}{m} \right) (E_{n2})^2 + \\
 &+ \frac{1}{2} \left( E_{n22} - \frac{1}{m} \right) (E_{n1})^2 - E_{n12} E_{n1} E_{n2}
 \end{aligned} \quad (4.5)$$

Now, the sum of  $P_n^{(1)}$  and  $D_n^{(1)}$  reduces to

$$\begin{aligned}
 P_n^{(1)} + D_n^{(1)} &= \frac{m^2}{24} \int d^3 k [E_{n11} (E_{n2})^2 + \\
 &+ E_{n22} (E_{n1})^2 - 2 E_{n12} E_{n1} E_{n2}] \cdot f''(E_n)
 \end{aligned} \quad (4.6)$$

Because of the relation

$$E_{n|j} \cdot f''(E_n) = \frac{\partial}{\partial k_j} f'(E_n)$$

we may perform a partial integration

$$\int d^3 k \, E_{n|jj}, E_{n|l} E_{n|l}, f''(E_n) = \oint d\sigma \cdot n_l E_{n|jj}, E_{n|l}, f'(E_n) \\ - \int d^3 k \, (E_{n|jj}, E_{n|l})_{|l} \cdot f'(E_n)$$

where the surface integral extends over the boundary of the reduced zone and  $n$  is the outside normal. This boundary is a polyhedron, each face of which goes over into the opposite face by a translation through a vector  $\mathbf{K}_\alpha$  of the reciprocal lattice. Because of the symmetry (B. 19) and since the normal  $\mathbf{n}$  has opposite sign for opposite faces, the surface integral is zero. Therefore partial integration of (4.6) yields

$$D_n^{(1)} + P_n^{(1)} = -\frac{m^2}{12} \int d^3 k \, [E_{n|11} E_{n|22} - (E_{n|12})^2] \cdot f'(E_n) \quad (4.7)$$

This is just the contribution of the  $n^{\text{th}}$  band to the Landau-Peierls diamagnetism  $\chi_P$  which according to (3.17) is

$$\chi_P = - \left( \frac{e}{2m} \right)^2 \pi^{-3} \sum_n (D_n^{(1)} + P_n^{(1)}) = \\ = + \frac{e^2}{6} (2\pi)^{-3} \sum_n \int d^3 k \, [E_{n|11} E_{n|22} - (E_{n|12})^2] f'(E_n) \quad (4.8)$$

The other terms in (4.5', 6') yield

$$\chi_a = - \left( \frac{e}{2m} \right)^2 \pi^{-3} \sum_n D_n^{(2)} = \\ = - \frac{e^2}{2m} (2\pi)^{-3} \sum_n \int d^3 k \, [(X_1^2)_{nn} + (X_2^2)_{nn}] f(E_n) \quad (4.9)$$

$$\chi_L = - \left( \frac{e}{2m} \right)^2 \pi^{-3} \sum_n P_n^{(2)} = \\ = - \frac{e^2}{2m^2} (2\pi)^{-3} \sum_n \int d^3 k \, |L_{3,nn}|^2 f'(E_n) \quad (4.10)$$

$$\chi' = - \left( \frac{e}{2m} \right)^2 \pi^{-3} \sum_n P_n^{(3)} = \\ = - \frac{e^2}{2m^2} (2\pi)^{-3} \sum_n \int d^3 k \, \sum_{n'}' [|L_{3,nn'}|^2 - |B_{nn'}|^2] f'(E_n) \quad (4.11)$$

$$\chi_V = - \left( \frac{e}{2m} \right)^2 \pi^{-3} \sum_n P_n^{(4)} = \\ = - \frac{e^2}{m^2} (2\pi)^{-3} \sum_n \int d^3 k \, \sum_{n'}' \frac{|B_{nn'}|^2}{E_n - E_{n'}} f(E_n) \quad (4.12)$$

$$\chi'' = - \left( \frac{e}{2m} \right)^2 \pi^{-3} \sum_n P_n^{(5)} = \\ = + \frac{e^2}{m^2} (2\pi)^{-3} \sum_n \int d^3 k \, \sum_{n'}' \frac{|B_{nn'}|^2}{E_n - E_{n'}} G(E_n, E_{n'}) \quad (4.13)$$

The total susceptibility is, apart from the Pauli spin paramagnetism,

$$\chi = \chi_P + \chi_a + \chi_L + \chi_V + \chi' + \chi'' \quad (4.14)$$

$\chi_a$  is purely diamagnetic (note that according to (A. 11) the  $X_j$  are hermitian matrices) and  $\chi_L$  is paramagnetic, while  $\chi_V$ ,  $\chi'$  and  $\chi''$  have no unique sign. Moreover the electrons of all filled bands (core electrons) contribute to  $\chi_a$ ,  $\chi_V$  and  $\chi''$  (factor  $f(E_n)$  or  $G(E_n, E_{n'})$ ) while in  $\chi_P$ ,  $\chi_L$  and  $\chi'$  only the electrons (and holes) in the neighbourhood of the Fermi energy  $\zeta$  (conduction electrons) are of importance (factor  $f'(E_n)$ ).

In our calculation  $\chi_P$  is the only term which depends on the energy band structure  $E_n(\mathbf{k})$  alone and not on other matrix elements. Some authors<sup>14)</sup> also quote a term which contains  $E_n|_{1122}$  only. It can be shown however that this term is gauge dependent and vanishes in our gauge (2.8). To be more precise, with the one-parameter gauge group introduced in ref. 1

$$\mathbf{A}' = -H \cdot (\lambda x_2, (\lambda - 1) x_1, 0) = \mathbf{A} + \text{grad} \left[ H \left( \frac{1}{2} - \lambda \right) x_1 x_2 \right]$$

$\mathbf{A}$  being given by (2.8), this term is found to be

$$\chi_\lambda = - (2\lambda - 1)^2 \cdot \frac{e^2}{2} (2\pi)^{-3} \sum_n \int d^3 k E_n|_{1122} \cdot f(E_n)$$

On the other hand it can be shown that  $\chi_P$  is independent of the gauge parameter  $\lambda$ .

A term of a peculiar nature is  $\chi''$  since it contains a factor  $G(E_n, E_{n'})$  which cannot be reduced to the Fermi function  $f(E_n)$ . Since by symmetrisation with respect to  $n$  and  $n'$

$$\left. \begin{aligned} \sum_n \sum_{n'} \frac{|B_{nn'}|^2}{E_n - E_{n'}} G(E_n, E_{n'}) = \\ = \frac{1}{2} \sum_n \sum_{n'} \frac{|B_{nn'}|^2 - |B_{n'n}|^2}{E_n - E_{n'}} G(E_n, E_{n'}) \end{aligned} \right\} \quad (4.15)$$

$\chi''$  is due to the anti-symmetric part of  $|B_{nn'}|$ . According to (3.9) and (A.19'') the  $B_{nn'}$  as defined in (4.2) may be considered as the non-diagonal elements of the matrix

$$B = L_3 - m (E_{11} X_2 - E_{12} X_1)$$

which can be shown to be non-hermitian in general so that  $|B_{nn'}| \neq |B_{n'n}^+| = |B_{n'n}|$  is possible\*).

In deriving the result (4.8 – 13) no explicit use has been made of symmetry properties of  $\mathfrak{H}_0$  other than the lattice periodicity. It can be seen that  $T$ -invariance of  $\mathfrak{H}_0$  does not induce any further simplification

\*) The occurrence of  $G(E_n, E_{n'})$  in  $\chi''$  is probably due to our approximation (2.11). This is suggested by the result of ref. 2 which is entirely expressible in terms of  $f(E_n)$ .

of the result. For instance it does not imply the vanishing of  $\chi_L$ . This is only the case if in addition invariance of  $\mathfrak{H}_0$  with respect to the inversion  $\mathbf{x} \rightarrow -\mathbf{x}$  ( $P$ -invariance) is assumed. Indeed, as follows from appendix B,  $T$ - and  $P$ -invariance together imply

$$L_{3,nn}(\mathbf{k}) = 0; \quad \text{all } n \quad (4.16)$$

(Strictly speaking (4.16) implies the vanishing of  $\chi_L$  for nondegenerate energy bands only because otherwise  $L_{3,nn}$  contains a trace over the index labelling this degeneracy).

It is instructive to write down the result (4.14) for the limiting cases of nearly free and of tightly-bound electrons.

In the case of nearly free electrons where the periodic potential is considered as a small perturbation, it follows from (C. 1) and the definitions (A. 15), (3.9), (4.2) that  $\chi_P$  is the only term of importance,

$$\chi \cong \chi_P \quad (\text{nearly free electrons}) \quad (4.17)$$

In tight binding approximation, on the other hand, the energy bands of interest are all very narrow, so that one may put (see (C. 3))

$$E_{n|j} \cong 0$$

at least for the occupied bands ( $E_n \lesssim \zeta$ ). Then according to (3.9), (4.2)

$$B_{nn'} \cong L_{3,nn'}; \quad n \neq n' \quad (4.18)$$

so that  $\chi'$  vanishes in this limit. According to (4.13, 15, 18) the hermiticity of  $L_3$ , which is shown in appendix C to be valid in this approximation, implies  $\chi'' \cong 0$  so that

$$\chi \cong \chi_a + \chi_L + \chi_V \quad (\text{tightly-bound electrons}) \quad (4.19)$$

Since in this approximation the  $\mathbf{k}$  dependence disappears,  $\mathbf{k}$ -integration simply yields the volume of the reduced Brillouin zone,

$$\int d^3 k = (2\pi)^3/v \quad (4.20)$$

$v$  being the volume of the unit cell of the crystal (which in the case of a Bravais lattice is also the volume per atom). Since there is no preferred axis with atomic states we may finally write eqs. (4.9, 10, 12) in the form

$$\chi_a \cong -\frac{e^2}{3mv} \cdot \sum_n \langle n | r^2 | n \rangle f(E_n) \quad (4.21)$$

$$\chi_V \cong -\frac{4}{3v} \left( \frac{e}{2m} \right)^2 \sum_n \sum_{n'} \frac{|\langle n | \mathbf{l} | n' \rangle|^2}{E_n - E_{n'}} f(E_n) \quad (4.22)$$

$$\chi_L \cong -\frac{2}{3v} \left( \frac{e}{2m} \right)^2 \sum_n |\langle n | \mathbf{l} | n \rangle|^2 f'(E_n) \quad (4.23)$$



These expressions are well known for atomic systems where  $f$  is the Maxwell distribution<sup>15)</sup>:  $\chi_a$  is a Langevin-Pauli diamagnetism,  $\chi_V$  a van Vleck paramagnetism and  $\chi_L$  a Langevin-Debye paramagnetism  $\mu^2/3kT$ . (Note the factor 2 for spin degeneracy.) Since  $P$ -invariance holds in atomic systems  $\chi_L$  is non-zero only for completely or nearly degenerate states  $|n\rangle$ ,  $|\langle n|L|n\rangle|^2$  being a sum over nondiagonal 'low frequency elements'<sup>15)</sup>. It is interesting to note also that (4.21) and (4.22) are identical with PEIERLS's  $\chi_1$  and  $\chi_2$  respectively.

### Appendix A: Matrix elements

We write the Bloch states defined by (2.7) and (2.9) as

$$|n\mathbf{k}\rangle = e^{i\mathbf{k}\mathbf{x}} u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{x}) \quad (\text{A.1})$$

where  $u_{n\mathbf{k}}$  is invariant under translations through a lattice vector  $\mathbf{R}_\alpha$ ,

$$u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{x} + \mathbf{R}_\alpha) = u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{x}) \quad (\text{A.2})$$

Consider now an operator  $O$  with this same symmetry (periodic  $O$ ). Reducing the unit cell  $\Omega_\alpha$  at  $\mathbf{R}_\alpha$  to the cell  $\Omega_0$  at the origin by

$$\mathbf{x} = \mathbf{x}' + \mathbf{R}_\alpha \quad (\text{A.3})$$

and making use of (A.2) the matrix element of  $O$  may be written as

$$\begin{aligned} \langle n\mathbf{k} | O | n'\mathbf{k}' \rangle &= \sum_{\alpha} e^{i(\mathbf{k}' - \mathbf{k})\mathbf{R}_\alpha} \cdot \\ &\cdot \int_{\Omega_0} d^3x' e^{-i\mathbf{k}\mathbf{x}'} u_{n\mathbf{k}}^*(\mathbf{x}') O e^{i\mathbf{k}'\mathbf{x}'} u_{n'\mathbf{k}'}(\mathbf{x}') \end{aligned}$$

where summation over  $\alpha$  extends over the infinite crystal. One proves in the usual way, starting from a finite normalization volume  $V$ , that in the limit  $V \rightarrow \infty$

$$\sum_{\alpha} e^{i\mathbf{k}\mathbf{R}_\alpha} = \frac{(2\pi)^3}{v} \cdot \delta(\mathbf{k}) \quad (\text{A.4})$$

where  $v$  is the volume of the unit cell. Thus

$$\langle n\mathbf{k} | O | n'\mathbf{k}' \rangle = O_{nn'}(\mathbf{k}) \cdot \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}') \quad (\text{periodic } O) \quad (\text{A.5})$$

where

$$O_{nn'}(\mathbf{k}) = \frac{(2\pi)^3}{v} \int_{\Omega_0} d^3x e^{-i\mathbf{k}\mathbf{x}} u_{n\mathbf{k}}^* O e^{i\mathbf{k}\mathbf{x}} u_{n'\mathbf{k}} \quad (\text{A.5}')$$

With  $O = 1$  the normalization

$$\frac{(2\pi)^3}{v} \int_{\Omega_0} u_{n\mathbf{k}}^* u_{n'\mathbf{k}} d^3x = \delta_{nn'}; \quad \text{all } \mathbf{k} \quad (\text{A.6})$$

follows from (2.9). Taking  $O = p_j = 1/i \partial/\partial x_j$  we get the matrix element (3.1) with

$$P_{j,nn'}(\mathbf{k}) = \frac{(2\pi)^3}{v} \int_{\Omega_0} u_{n\mathbf{k}}^* \left( \frac{1}{i} \frac{\partial}{\partial x_j} + \hbar_j \right) u_{n'\mathbf{k}} d^3x \quad (\text{A.7})$$

Since partial integration of (A. 7) yields a vanishing surface integral because of the periodicity (A. 2), it follows that the  $P_j$  are hermitian matrices in the band index  $n$ ,

$$P_j^+(\mathbf{k}) = P_j(\mathbf{k}) \quad (\text{A.8})$$

The matrix element of the coordinate  $x_j$ , for which the rule (A. 4) does not apply, may be written as

$$\begin{aligned} (n\mathbf{k} | x_j | n'\mathbf{k}') &= \int d^3x u_{n\mathbf{k}}^* u_{n'\mathbf{k}'} \frac{1}{i} \frac{\partial}{\partial k'_j} e^{i(\mathbf{k}' - \mathbf{k})\mathbf{x}} \\ \text{or} \quad (n\mathbf{k} | x_j | n'\mathbf{k}') &= \frac{1}{i} \frac{\partial}{\partial k'_j} \int u_{n\mathbf{k}}^* u_{n'\mathbf{k}'} e^{i(\mathbf{k}' - \mathbf{k})\mathbf{x}} d^3x - \\ &\quad - \int u_{n\mathbf{k}}^* \frac{1}{i} \frac{\partial u_{n'\mathbf{k}'}}{\partial k'_j} e^{i(\mathbf{k}' - \mathbf{k})\mathbf{x}} d^3x \end{aligned} \quad (\text{A.9})$$

In the second integral the differentiation  $1/i \partial/\partial k'_j$ , behaves like a periodic operator, so that we can apply (A. 5,5') and get

$$- \int u_{n\mathbf{k}}^* \frac{1}{i} \frac{\partial u_{n'\mathbf{k}'}}{\partial k'_j} e^{i(\mathbf{k}' - \mathbf{k})\mathbf{x}} d^3x = X_{j,nn'}(\mathbf{k}) \cdot \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}') \quad (\text{A.10})$$

with

$$X_{j,nn'}(\mathbf{k}) = \frac{(2\pi)^3}{v} \cdot \int_{\Omega_0} u_{n\mathbf{k}}^* i \frac{\partial}{\partial k_j} u_{n'\mathbf{k}} d^3x \quad (\text{A.10}')$$

With (A. 1) and the normalization (2.9), eq. (3.2) follows immediately from (A. 8). Eq. (A. 9) suggests the interpretation that the operator  $x_j$  be split into a periodic and a non-periodic part which somewhat resemble (without being identical to) a saw tooth function and a stepped function respectively. Application of  $i \partial/\partial k_j$  to eq. (A. 6) immediately proves the hermitian property of the matrix (A. 10'),

$$X_j^+(\mathbf{k}) = X_j(\mathbf{k}) \quad (\text{A.11})$$

The basic assumption underlying the Bloch representation is that the functions  $u_{n\mathbf{k}}$  for any  $\mathbf{k}$  in the reduced zone form a complete set within the domain  $\Omega_0$ . Taking into account the normalization (A. 5) the completeness relation is

$$\sum_n u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{x}) u_{n\mathbf{k}}^*(\mathbf{x}') = \frac{v}{(2\pi)^3} \delta(\mathbf{x} - \mathbf{x}'); \quad \text{all } \mathbf{k} \quad (\text{A.12})$$

The completeness of the Bloch states (A. 1) is then a consequence of (A. 12). With the value (4.20) for the volume of the reduced zone it can be expressed as

$$\sum_n \int d^3k |n\mathbf{k}\rangle \langle n\mathbf{k}| = 1 \quad (\text{A.13})$$

Then it follows for any periodic operator  $O$ , making use of (A. 5) and (3.2), that

$$\left. \begin{aligned} (n\mathbf{k} | x_j O | n'\mathbf{k}') &= \sum_{n''} \int d^3 k'' (n\mathbf{k} | x_j | n''\mathbf{k}'') (n''\mathbf{k}'' | O | n'\mathbf{k}') = \\ &= O_{nn'}(\mathbf{k}') \frac{1}{i} \cdot \frac{\partial}{\partial k'_j} \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}') + (X_j(\mathbf{k}) O(\mathbf{k}))_{nn'} \cdot \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}') \end{aligned} \right\} \quad (\text{A.14})$$

$$\text{and} \quad \left. \begin{aligned} (n\mathbf{k} | O x_j | n'\mathbf{k}') &= O_{nn'}(\mathbf{k}) \frac{1}{i} \frac{\partial}{\partial k'_j} \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}') + \\ &+ (O(\mathbf{k}) X_j(\mathbf{k}))_{nn'} \cdot \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}') \end{aligned} \right\} \quad (\text{A.14}')$$

If we put  $O = p_l$  in (A. 14) we obtain eq. (3.3) with

$$L_3 = X_1 P_2 - X_2 P_1 \quad (\text{A.15})$$

The hermitian conjugate is by (A. 8,11)

$$L_3^+ = P_2 X_1 - P_1 X_2 \quad (\text{A.15}')$$

Comparison of (A. 14) and (A.14') shows that although  $l_3$  is a hermitian operator,  $L_3(\mathbf{k})$  is in general not a hermitian matrix.

The matrix element of a function

$$\varphi_U(\mathbf{x}) = \begin{cases} 1 & \text{inside a region } U \\ 0 & \text{outside } U \end{cases}$$

may be written with the help of (A. 2, 3, 6) as

$$\left. \begin{aligned} \Delta_{nn'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') &\equiv (n\mathbf{k} | \varphi_U(\mathbf{x}) | n'\mathbf{k}') = \sum_{\alpha} e^{i(\mathbf{k}' - \mathbf{k})\mathbf{R}_{\alpha}} \cdot \\ &\cdot \int_{\Omega_0} e^{i(\mathbf{k}' - \mathbf{k})\mathbf{x}'} u_{n\mathbf{k}}^*(\mathbf{x}') u_{n'\mathbf{k}'}(\mathbf{x}') \cdot \varphi_U(\mathbf{x}' + \mathbf{R}_{\alpha}) d^3 x' \end{aligned} \right\} \quad (\text{A.16})$$

or

$$\Delta_{nn'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') \cong \frac{v}{(2\pi)^3} \delta_{nn'} \cdot \sum_{\mathbf{R}_{\alpha} \text{ in } U} e^{i(\mathbf{k}' - \mathbf{k})\mathbf{R}_{\alpha}} \quad (\text{A.16}')$$

The inaccuracy of the last formula caused by the cells  $\Omega_{\alpha}$  that are cut by the boundary of  $U$  vanishes in the limit  $U \rightarrow \infty$ . Thus eq. (2.12) follows from (A. 16', 4).

For the discussion in section 2 we are interested in the matrix elements of  $\varphi_U(\mathbf{x}) \cdot x_j$  which represents the vector potential for a magnetic field with the same behaviour as  $\varphi_U$  except at the boundary of  $U$  (to avoid complications  $\varphi_U$  may be assumed to be continuous at this boundary). In analogy to eq. (A. 9) we can write

$$\begin{aligned} (n\mathbf{k} | \varphi_U(\mathbf{x}) \cdot x_j | n'\mathbf{k}') &= \frac{1}{i} \cdot \frac{\partial}{\partial k'_j} \int d^3 x u_{n\mathbf{k}}^* u_{n'\mathbf{k}'} \varphi_U(\mathbf{x}) e^{i(\mathbf{k}' - \mathbf{k})\mathbf{x}} - \\ &- \int d^3 x u_{n\mathbf{k}}^* \frac{1}{i} \cdot \frac{\partial u_{n'\mathbf{k}'}}{\partial k'_j} \varphi_U e^{i(\mathbf{k}' - \mathbf{k})\mathbf{x}} \end{aligned}$$

Using (A. 13) the second integral may be expressed as

$$\sum_{n''} \int d^3 k'' (n \mathbf{k} | \varphi_U | n'' \mathbf{k}'') \cdot \int d^3 x u_{n'' \mathbf{k}''}^* \frac{1}{i} \frac{\partial u_{n' \mathbf{k}'}}{\partial k'_j} e^{i(\mathbf{k}' - \mathbf{k}'') \cdot \mathbf{x}}$$

With the help of (A. 10, 16) we get

$$\left. \begin{aligned} (u \mathbf{k} | \varphi_U(\mathbf{x}) \cdot x_j | n' \mathbf{k}') &= \frac{1}{i} \frac{\partial}{\partial k'_j} \Delta_{nn'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') + \\ &+ (\Delta(\mathbf{k}, \mathbf{k}') \cdot X_j(\mathbf{k}'))_{nn'} \end{aligned} \right\} \quad (\text{A.17})$$

An alternative form may be obtained in expressing  $x_j$  by the derivative  $-1/i \partial/\partial k_j$  instead of  $+1/i \partial/\partial k'_j$  applied to  $\exp i(\mathbf{k}' - \mathbf{k}) \cdot \mathbf{x}$ . It is

$$\left. \begin{aligned} (n \mathbf{k} | \varphi_U(\mathbf{x}) \cdot x_j | n' \mathbf{k}') &= -\frac{1}{i} \frac{\partial}{\partial k_j} \Delta_{nn'}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') + \\ &+ (X_j(\mathbf{k}) \cdot \Delta(\mathbf{k}, \mathbf{k}'))_{nn'} \end{aligned} \right\} \quad (\text{A.17}')$$

From (A.14,14') it follows after a partial integration

$$\left. \begin{aligned} \int_{\varepsilon} d^3 k' (n \mathbf{k} | i [O, x_j] | n' \mathbf{k}') &= \\ &= \frac{\partial}{\partial k_j} O_{nn'}(\mathbf{k}) + i [O(\mathbf{k}), X_j(\mathbf{k})]_{nn'} \end{aligned} \right\} \quad (\text{A.18})$$

By applying this formula to  $O = \mathfrak{S}_0$  and making use of the commutation relation

$$i[\mathfrak{S}_0, x_j] = \frac{1}{m} p_j$$

we obtain the formula

$$\frac{1}{m} P_j(\mathbf{k}) = E_{lj} + i[E(\mathbf{k}), X_j(\mathbf{k})] \quad (\text{A.19})$$

or in components

$$P_{j,nn}(\mathbf{k}) = m E_{nlj} \quad (\text{A.19}')$$

$$P_{j,nn'}(\mathbf{k}) = i m (E_n(\mathbf{k}) - E_{n'}(\mathbf{k})) \cdot X_{j,nn'}(\mathbf{k}); n \neq n' \quad (\text{A.19}'')$$

A second relation is obtained with  $O = p_l$  and the commutator

$$i[p_l, x_j] = \delta_{lj}$$

In this case (A. 17) yields the sum rule

$$\delta_{lj} = P_{llj} + i[P_l(\mathbf{k}), X_j(\mathbf{k})] \quad (\text{A.20})$$

Recalling the definitions (A. 15, 15') one sees that eq. (3.10) is an immediate consequence of (A. 20). The diagonal part of (A. 20) together with (A.19',19'') yields

$$E_{nljl} = \frac{1}{m} \delta_{lj} + \frac{1}{m^2} \sum_{n'} \frac{P_{l,nn'} P_{j,n'n} + P_{j,nn'} P_{l,n'n}}{E_n - E_{n'}} \quad (\text{A.21})$$

## Appendix B: Symmetries

The basis for the symmetry relations to be derived in this appendix is a representation in terms of the periodic part of the Bloch states (A. 1). As is seen from (2.3, 7) it satisfies the Schrödinger equation

$$\mathfrak{H}_{\mathbf{k}} u_{n\mathbf{k}} = E_n(\mathbf{k}) u_{n\mathbf{k}}; \quad \text{all } \mathbf{k} \quad (\text{B.1})$$

with

$$\mathfrak{H}_{\mathbf{k}} = \frac{1}{2m} \left( \frac{1}{i} \cdot \frac{\partial}{\partial \mathbf{x}} + \mathbf{k} \right)^2 + V(\mathbf{x}) \quad (\text{B.1}')$$

*T*-invariance: According to Wigner's definition of time reversal<sup>16)</sup> any wave function  $\psi(\mathbf{x}, t)$  is transformed into  $\psi^*(\mathbf{x}, -t)$ . This transformation leaves the Schrödinger equation

$$\mathfrak{H}_0 \psi = i \frac{\partial \psi}{\partial t} \quad (\text{B.2})$$

invariant if  $\mathfrak{H}_0$  is real,

$$\mathfrak{H}_0 = \mathfrak{H}_0^* \quad (T\text{-invariance}) \quad (\text{B.3})$$

*T*-invariance is thus verified for the  $\mathfrak{H}_0$  in (2.3). The corresponding invariance of  $\mathfrak{H}_{\mathbf{k}}$  is, according to (B. 1')

$$\mathfrak{H}_{\mathbf{k}} = \mathfrak{H}_{-\mathbf{k}}^* \quad (\text{B.3}')$$

Thus time reversal of  $u_{n\mathbf{k}}$  has to be defined as

$$u_{n\mathbf{k}} \rightarrow u_{n\mathbf{k}}' = u_{n,-\mathbf{k}}^* \quad (\text{B.4})$$

According to (B. 1, 3') the new  $u_{n\mathbf{k}}'$  satisfy the equation

$$\mathfrak{H}_{\mathbf{k}} u_{n\mathbf{k}}' = E_n(-\mathbf{k}) u_{n\mathbf{k}}' \quad (\text{B.5})$$

and may be normalized according to (A. 6). By virtue of their completeness the  $u_{n\mathbf{k}}$  may be taken as basis for an expansion of  $u_{n\mathbf{k}}'$ ,

$$u_{n\mathbf{k}}' = \sum_{n'} u_{n'\mathbf{k}} S_{n'n}(\mathbf{k}) \quad (\text{B.6})$$

Eq. (B. 5) together with (B. 1) yields, after multiplication with  $u_{n\mathbf{k}}^*$  and integration, using (A. 6),

$$(E_n(\mathbf{k}) - E_n(-\mathbf{k})) \cdot S_{n'n}(\mathbf{k}) = 0$$

If  $\mathbf{k}$  is not a point of degeneracy (note that  $\mathbf{k}$ -independent degeneracies have been admitted but not explicitly labelled in this paper) this equation implies

$$E_n(-\mathbf{k}) = E_n(\mathbf{k}) \quad (\text{B.6})$$

and also that  $S(\mathbf{k})$  is diagonal in  $n$ . By an appropriate choice of phases of the  $u_{n\mathbf{k}}$  it is therefore always possible to have

$$S_{n'n}(\mathbf{k}) = \delta_{n'n}$$



and thus

$$u_{n,-k}^* = u_{nk} \quad (\text{B.7})$$

The implication of this equality is, according to (A. 7) and (A. 10'),

$$P_j^*(-\mathbf{k}) = -P_j(\mathbf{k}); X_j^*(-\mathbf{k}) = +X_j(\mathbf{k}) \quad (\text{B.8})$$

from which, in view of the definition (A. 15), it follows that

$$L_3^*(-\mathbf{k}) = -L_3(\mathbf{k}) \quad (\text{B.9})$$

*P*-invariance: Spatial inversion transforms a general  $\psi(\mathbf{x}, t)$  into  $\psi(-\mathbf{x}, t)$  and the Schrödinger equation (B. 2) is invariant if  $\mathfrak{H}_0$  conserves the parity,

$$\mathfrak{H}_0(\mathbf{x}) = \mathfrak{H}_0(-\mathbf{x}) \quad (\text{P-invariance}) \quad (\text{B.10})$$

The corresponding invariance of  $\mathfrak{H}_k$  is according to (B. 1')

$$\mathfrak{H}_k(\mathbf{x}) = \mathfrak{H}_{-k}(-\mathbf{x}) \quad (\text{B.10}')$$

Thus space inversion of  $u_{nk}$  has to be defined as

$$u_{nk} \rightarrow u_{nk}''(\mathbf{x}) = u_{n,-k}(-\mathbf{x}) \quad (\text{B.11})$$

From here onwards, the same reasoning again leads to (B. 6) and to

$$u_{n,-k}(-\mathbf{x}) = u_{nk}(\mathbf{x}) \quad (\text{B.12})$$

Applied to (A. 7) and (A. 10') this relation yields

$$P_j(-\mathbf{k}) = -P_j(\mathbf{k}); X_j(-\mathbf{k}) = -X_j(\mathbf{k}) \quad (\text{B.13})$$

and, according to (A.15),

$$L_3(-\mathbf{k}) = L_3(\mathbf{k}) \quad (\text{B.14})$$

Combination of *T*- and *P*-invariance, (B.8,13), and use of the hermiticity (A.8,11) leads to

$$P_{j,n'n}(\mathbf{k}) = P_{j,nn'}(\mathbf{k}); X_{j,n'n}(\mathbf{k}) = -X_{j,nn'}(\mathbf{k}) \quad (\text{B.15})$$

Similarly (B.9,14) together with (3.8) yields

$$L_{3,nn'} + L_{3,n'n} = \frac{1}{2} (P_{2,nn'|1} - P_{1,nn'|2}) \quad (\text{B.16})$$

For  $n = n'$  this equation goes over into (4.16) in view of (A. 19').

A quite different type of symmetry occurs if one tries to extend eq. (B.1,1') to  $\mathbf{k}$ -points outside of the reduced zone. This is obviously possible formally since  $\mathbf{k}$  plays the role of a parameter, the restriction to the reduced zone originating from the completeness hypothesis. If  $\mathbf{K}_x$  is a vector of the reciprocal lattice so that

$$e^{i\mathbf{K}_x \mathbf{R}_\beta} = 1; \text{ all } \beta$$

the function 
$$v_{n\mathbf{k}} \equiv e^{i\mathbf{K}_x \cdot \mathbf{x}} u_{n,\mathbf{k}+\mathbf{K}_x} \quad (\text{B.17})$$

obviously has again the periodicity (A.2) and, furthermore, satisfies the equation

$$\mathfrak{H}_{\mathbf{k}} v_{n\mathbf{k}} = E_n(\mathbf{k} + \mathbf{K}_x) v_{n\mathbf{k}} \quad (\text{B.18})$$

Again the reasoning is the same as between [B.5] and [B.7], the result being

$$E_n(\mathbf{k} + \mathbf{K}_x) = E_n(\mathbf{k}) \quad (\text{B.19})$$

and 
$$e^{i\mathbf{K}_x \cdot \mathbf{x}} u_{n,\mathbf{k}-\mathbf{K}_x} = u_{n\mathbf{k}} \quad (\text{B.20})$$

or according to (A.1)

$$|n, \mathbf{k} + \mathbf{K}_x\rangle = |n \mathbf{k}\rangle \quad (\text{B.20}')$$

### Appendix C: Nearly Free and Tightly-Bound Electrons

The modifications for nearly free electrons are most easily obtained from the relation

$$i[\mathbf{p}, \mathfrak{H}_0] = \frac{\partial V}{\partial \mathbf{x}}$$

the right hand side of which is a small periodic function. Using (A.5) for  $O = \mathbf{p}$  and  $\partial V/\partial \mathbf{x}$  we have

$$i(E_{n'}(\mathbf{k}) - E_n(\mathbf{k})) \cdot P_{j,nn'}(\mathbf{k}) = \varepsilon_{j,nn'}(\mathbf{k}) \equiv \frac{(2\pi)^2}{v} \int_{\Omega_0} u_{n\mathbf{k}}^* u_{n'\mathbf{k}} \frac{\partial V}{\partial x_j} d^3x$$

Thus according to (A.19) the non-diagonal elements of  $X_j$  are of order  $\varepsilon$  as are those of  $P_j$ . On the other hand  $P$ -invariance holds in zeroth order in  $\partial V/\partial \mathbf{x}$  so that according to (B.15) the diagonal elements of  $X_j$  are at least of first order in  $\varepsilon$ . Therefore, with (A.19'),

$$X_j = O(\varepsilon); \quad P_j = m E_j + O(\varepsilon) \quad (\text{C.1})$$

We only mention that the energy band structure follows by integration of eq. (A.21) taking into account the symmetries (B.6, 19) and is, in an appropriate labelling,

$$E_{n\mathbf{x}}(\mathbf{k}) = \frac{\hbar^2}{2m} (\mathbf{k} + \mathbf{K}_x)^2 + O(\varepsilon^2)$$

(It is of the form of fig. 11, p. 86 of PIERLS<sup>18</sup>).

The tight binding approximation, as is well known [see e. g. PIERLS<sup>18</sup>, p. 79ff.] starts from the assumption that the periodic potential may be written as

$$V(\mathbf{x}) = \sum_{\mathbf{R}_x} U(\mathbf{x} - \mathbf{R}_x)$$

where  $U(\mathbf{x})$  is an atomic potential. (We restrict the discussion to Bravais lattices. For lattices with more than one atom per unit cell the tight binding approximation is more complicated). In this approximation the

Bloch states can be built up from the atomic wave functions  $\varphi_n(\mathbf{x})$  which satisfy the Schrödinger equation

$$\left(\frac{1}{2m}p^2 + U\right)\varphi_n = e_n \varphi_n$$

Indeed, if  $U(\mathbf{x})$  and  $\varphi_n(\mathbf{x})$  do not overlap appreciably for neighbouring atoms in the crystal then

$$u_{nk}(\mathbf{x}) = \sqrt{\frac{v}{(2\pi)^3}} \sum_{\alpha} e^{i\mathbf{k}(\mathbf{R}_{\alpha}-\mathbf{x})} \varphi_n(\mathbf{x} - \mathbf{R}_{\alpha}) \quad (\text{C.2})$$

(which has the correct periodicity (A.2)), approximately satisfies the Schrödinger equation (B.1) with

$$E_n(\mathbf{k}) = e_n \quad (\text{C.3})$$

If the  $\varphi_n$  are normalized to one and form a complete set then also (A.6) and (A.12) are approximately fulfilled. With (C.2) it follows from (A.7) and (A.10') that

$$P_{j,nn'}(\mathbf{k}) \cong \int d^3x \varphi_n^* \frac{1}{i} \cdot \frac{\partial}{\partial x_j} \varphi_{n'} \equiv \langle n | p_j | n' \rangle \quad (\text{C.4})$$

and

$$\chi_{j,nn'}(\mathbf{k}) \cong \int d^3x \varphi_n^* x_j \varphi_{n'} \equiv \langle n | x_j | n' \rangle \quad (\text{C.5})$$

(C.4) shows that  $P_j(\mathbf{k})$  does not appreciably depend on  $\mathbf{k}$  so that according to (3.10)  $L_3$  becomes a hermitian matrix in this limit,

$$L_3^+ - L_3 \cong 0 \quad (\text{C.6})$$

and, with the help of the completeness of the atomic states  $|n\rangle$ , is approximately given by

$$L_{3,nn'}(\mathbf{k}) \cong \langle n | l_3 | n' \rangle \quad (\text{C.7})$$

### References

- <sup>1)</sup> C. P. ENZ, *Nuovo Cimento* **6**, Supplemento, p. 1224 (1957).
- <sup>2)</sup> J. E. HEBBORN and E. H. SONDEHEIMER, *Phys. Rev. Letters* **2**, 150 (1959) and preprint.
- <sup>3)</sup> R. PEIERLS, *Z. Physik* **80**, 763 (1933).
- <sup>4)</sup> E. N. ADAMS, *Phys. Rev.* **89**, 633 (1953).
- <sup>5)</sup> A. H. WILSON, *Proc. Cambridge Phil. Soc.* **49**, 292 (1953).
- <sup>6)</sup> C. P. ENZ, succeeding paper.
- <sup>7)</sup> P. G. HARPER, *Proc. Phys. Soc. A* **68**, 874 and 879 (1955).
- <sup>8)</sup> J. M. LUTTINGER and W. KOHN, *Phys. Rev.* **97**, 869 (1955). Footnote 1 of this paper gives a list of references.
- <sup>9)</sup> J. M. LUTTINGER, *Phys. Rev.* **84**, 814 (1951).
- <sup>10)</sup> T. KJELDAAS, JR., and W. KOHN, *Phys. Rev.* **105**, 806 (1957). See also W. KOHN, *Bull. Amer. Phys. Soc.* **4**, 129, A 6 (1959).
- <sup>11)</sup> E. N. ADAMS, *Phys. Rev.* **85**, 41 (1952).
- <sup>12)</sup> E. N. ADAMS, *J. Chem. Phys.* **21**, 2013 (1953).
- <sup>13)</sup> R. E. PEIERLS, *Quantum Theory of Solids* (Oxford 1955).
- <sup>14)</sup> See ref. 2 and an unpublished paper by G. WENTZEL quoted in ref. 2.
- <sup>15)</sup> J. H. VAN VLECK, *The Theory of Electric and Magnetic Susceptibilities* (Oxford 1932), p. 89-91, 187-195.
- <sup>16)</sup> E. WIGNER, *Nachr. Akad. Wiss. Göttingen, Kl. II*, **37**, 546 (1932).

# Temperature Dependence of Magnetic Susceptibility

by C. P.ENZ

Physikalisches Institut der ETH, Zürich

(15. VIII. 1959)

*Zusammenfassung.* Der in der vorangehenden Arbeit<sup>1)</sup> abgeleitete Ausdruck für die Suszeptibilität genügt nicht zur Erklärung einer bei einigen Halbleitern im Bereich mässig tiefer Temperaturen gemessenen Temperaturabhängigkeit. Hier wird der Rahmen der Theorie erweitert durch Heranziehung der Elektron-Phonon Wechselwirkung. Diese gibt zu einer zusätzlichen Suszeptibilität Anlass, welche zwar hier nicht explizit berechnet wird, von der jedoch plausibel gemacht wird, dass sie den Effekt erklärt.

## 1. Introduction

The temperature dependence of the formulae (4.9–13) derived in the previous paper<sup>1)</sup> (all quotations of the type (4.9) refer to this paper) is governed by the Fermi distribution  $f(E)$  and by the function  $G(E_n, E_n)$ . Although the result (4.14) is likely to account for the  $\chi - T$  dependence of many crystals, anomalous behaviour is empirically found for some semiconductors. These substances show a diamagnetic susceptibility of the form

$$\chi_{exp} \cong -a + bT; \quad b > 0 \quad (1)$$

at moderately low temperatures where the density of conduction carriers is practically zero<sup>2)</sup>. Since in the region of validity of (1) the minimum  $|E_g - \zeta|$  of the energy difference  $|E_n(\mathbf{k}) - \zeta|$  is of the order of about  $20 \cdot kT$  the total susceptibility (4.14) there is of the form

$$\chi \cong \chi_0 + \chi_1(T) e^{-(E_g - \zeta)/kT}$$

where  $\chi_0$  is independent of  $T$ . Because of the factor  $\exp(-(E_g - \zeta)/kT)$  the second term in the latter formula is practically zero simultaneously with the density of conduction carriers. Therefore our formula for  $\chi$  does not account for the behaviour (1).

Some time ago an explanation for such an anomalous temperature dependence was proposed by KRUMHANSL and BROOKS<sup>3)</sup>. According to these authors a van Vleck magnetism of the form (4.22) should be of importance, the leading term being one which connects valence and conduction band states. In their proposal the behaviour (1) is due to a temperature variation of the energy denominator which for the states in

question is well known empirically. It was pointed out earlier<sup>4</sup>), however, that from the point of view of a more general theory the justification for picking out this special term (4.22) is not convincing. Moreover, the temperature dependence assumed by KRUMHANSL and BROOKS is of a rather special nature. In fact, the variation of the energy gap between valence and conduction band as function of temperature has long previously been explained by FAN and others<sup>5</sup>) as a second order effect of the electron-phonon interaction. Therefore a more rigorous theory of the anomalous behaviour (1) would have to develop from this interaction. In what follows we shall develop the general lines of such a theory without, however, entering into a detailed calculation. It will become clear, at least in tight binding approximation, that a new type of function of  $T$ , different from those occurring in eqs. (4.9–13) comes into play, which qualitatively may well account for (1).

## 2. Statistics of the electron-phonon system

Since we are interested only in statistical effects of the electron-phonon interaction a second quantisation point of view is appropriate for the whole system.

The basic electronic states without electron-phonon interaction are the eigenstates  $|k\rangle$  of the Hamiltonian  $\mathfrak{H}$  with a magnetic field present, eq. (2.3),

$$\mathfrak{H}|k\rangle = W_k|k\rangle \quad (2)$$

Then the second quantized electron Hamiltonian is

$$\mathfrak{H}_{EL} = \sum_k N_k W_k \quad (3)$$

where

$$N_k = a_k^* a_k \quad (4)$$

is the occupation number of electrons in state  $|k\rangle$ ,  $N_k = 0$  or  $1$ , and  $a_k^*$ ,  $a_k$  are emission and absorption operators obeying the anticommutation rule

$$\{a_k, a_{k'}^*\} = \delta_{kk'} \quad (5)$$

The phonon amplitude at the lattice site  $R_\alpha$  we write as (the lattice is supposed here to be of Bravais type)

$$u_\alpha(t) = (2GM)^{-\frac{1}{2}} \sum_q \omega_q^{-\frac{1}{2}} e_q b_q e^{i(qR_\alpha - \omega_q t)} + \text{herm. conj.} \quad (6)$$

where  $G$  is the number of atoms in the crystal (which is assumed here to be finite) and  $M$  their mass.  $q$  stands for the phonon wave vector  $\mathbf{q}$  and the polarisation index  $s = 1, 2, 3$ ,  $q = (s, \mathbf{q})$ .  $e_q$  is a polarization vector satisfying

$$(e_{s,q} e_{s',q}) = \delta_{ss'}; \quad \text{all } \mathbf{q} \quad (7)$$

$b_q$  is an absorption operator which obeys the commutation rule

$$[b_q, b_{q'}^*] = \delta_{qq'} \quad (8)$$



Then the free phonon Hamiltonian is

$$\mathfrak{H}_{Ph} = \frac{M}{2} \sum_{\alpha} (\dot{\mathbf{u}}_{\alpha}^2 - \mathbf{u}_{\alpha} \ddot{\mathbf{u}}_{\alpha}) = \sum_q n_q \omega_q \quad (9)$$

where

$$n_q = b_q^* b_q \quad (10)$$

is the number of phonons in state  $q$ . In  $\mathfrak{H}_{Ph}$  the zero point energy has been eliminated by an appropriate ordering of operators.

For the electron-phonon interaction we take (see e.g. PEIERLS<sup>6</sup>), p. 125)

$$\mathfrak{H}_{int} = \sum_{\alpha} \mathbf{W}(\mathbf{x} - \mathbf{R}_{\alpha}) \mathbf{u}_{\alpha}(0) \quad (11)$$

which in second quantization leads to

$$\left. \begin{aligned} \mathfrak{H}_i &= \sum_k \sum_{k'} a_k^* \langle k | \mathfrak{H}_{int} | k' \rangle a_{k'} = \\ &= \sum_k \sum_{k'} \sum_q \langle k | C_q | k' \rangle a_k^* a_{k'} b_q + \text{herm. conj.} \end{aligned} \right\} \quad (12)$$

with

$$C_q(\mathbf{x}) = (2 G M \omega_q)^{-\frac{1}{2}} \sum_{\alpha} \mathbf{e}_q \mathbf{W}(\mathbf{x} - \mathbf{R}_{\alpha}) e^{i \mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_{\alpha}} \quad (12')$$

Our task is now to analyse the canonical ensemble defined by the total Hamiltonian

$$\mathfrak{H}_{total} = \mathfrak{H}_f + \mathfrak{H}_i \quad (13)$$

where

$$\mathfrak{H}_f = \mathfrak{H}_{El} + \mathfrak{H}_{Ph} \quad (13')$$

is the free Hamiltonian, by treating the electron-phonon interaction  $\mathfrak{H}_i$  and later also the magnetic field as perturbations. As usual we circumvent the subsidiary condition that

$$N = \sum_k N_k \quad (14)$$

should be constant by going to the grand canonical ensemble where this condition is relaxed by introducing a Lagrange multiplier  $\zeta$ , the Fermi energy. Then

$$e^{-\alpha \mathfrak{H}_{total}} = \text{Trace } e^{-\alpha (\mathfrak{H}_{total} - N \zeta)}, \quad \alpha \equiv \frac{1}{k T} \quad (15)$$

defines the total thermodynamic potential  $\mathfrak{Q}_{total} = \varphi_{total} - \bar{N} \cdot \zeta$  and the total free energy  $\varphi_{total}$ ,  $\bar{N}$  being the average number of electrons.

The perturbation expansion in  $\mathfrak{H}_i$  can be performed exactly in the same way as in section 2 of ref. 1, writing

$$e^{-\alpha \mathfrak{Q}_{total}} = \frac{1}{2 \pi i} \oint dz e^{-\alpha z} \text{Trace } (z - \mathfrak{H}_{total} + N \zeta)^{-1} \quad (16)$$

and

$$\left. \begin{aligned} (z - \mathfrak{G}_{total} + N \zeta)^{-1} &= (z - \mathfrak{G}_f + N \zeta)^{-1} + \\ &+ (z - \mathfrak{G}_f + N \zeta)^{-1} \mathfrak{G}_i (z - \mathfrak{G}_f + N \zeta)^{-1} + \\ &+ (z - \mathfrak{G}_f + N \zeta)^{-1} \mathfrak{G}_i (z - \mathfrak{G}_f + N \zeta)^{-1} \mathfrak{G}_i (z - \mathfrak{G}_f + N \zeta)^{-1} + \dots \end{aligned} \right\} \quad (16')$$

By going into the representation where the occupation numbers  $N_k$  and  $n_q$  are diagonal the trace of the first order term in (16') is seen to vanish since  $\mathfrak{G}_f$  is diagonal and  $\mathfrak{G}_i$  has no diagonal elements. Therefore we can write

$$\left. \begin{aligned} \Omega_{total} &= \Omega_f + \Omega' + \dots \\ e^{-\alpha \Omega_{total}} &= e^{-\alpha \Omega_f} (1 - \alpha \Omega' + \dots) \end{aligned} \right\} \quad (17)$$

where

$$e^{-\alpha \Omega_f} = \text{Trace } e^{-\alpha (\mathfrak{G}_f - N \zeta)} \quad (17')$$

and

$$\left. \begin{aligned} -\alpha e^{-\alpha \Omega_f} \Omega' &= \frac{1}{2\pi i} \oint dz e^{-\alpha z} \text{Trace} [(z - \mathfrak{G}_f + N \zeta)^{-1} \cdot \\ &\cdot \mathfrak{G}_i (z - \mathfrak{G}_f + N \zeta)^{-1} \mathfrak{G}_i (z - \mathfrak{G}_f + N \zeta)^{-1}] \end{aligned} \right\} \quad (17'')$$

Calling  $|A\rangle$  a general state in the representation by the occupation numbers  $N_k, n_q, N_A$  the value of (14) and  $E_A$  the eigenvalue of  $\mathfrak{G}_f$  in this state,

$$\mathfrak{G}_f |A\rangle = E_A |A\rangle \quad (18)$$

eqs. (17') and (17'') read

$$e^{-\alpha \Omega_f} = \sum_A e^{-\alpha (E_A - N_A \zeta)} \quad (19)$$

and

$$\begin{aligned} -\alpha e^{-\alpha \Omega_f} \Omega' &= \frac{1}{2\pi i} \oint dz e^{-\alpha z} \sum_A \sum_B (z - E_A + N_A \zeta)^{-2} \cdot \\ &\cdot \langle A | \mathfrak{G}_i | B \rangle (z - E_B + N_B \zeta)^{-1} \langle B | \mathfrak{G}_i | A \rangle \end{aligned}$$

Making use of (3.18) and of the identity

$$\frac{e^{-\alpha a} - e^{-\alpha b}}{a - b} = -e^{-\alpha b} \int_0^{\alpha} d\lambda e^{-\lambda(a-b)}$$

we obtain

$$\left. \begin{aligned} -\alpha e^{-\alpha \Omega_f} \Omega' &= \sum_A \sum_B |\langle A | \mathfrak{G}_i | B \rangle|^2 e^{-\alpha (E_B - N_B \zeta)} \cdot \\ &\cdot \int_0^{\alpha} \lambda d\lambda e^{-\lambda [E_A - N_A \zeta - (E_B - N_B \zeta)]} \end{aligned} \right\} \quad (20)$$

We first want to calculate the expressions

$$S_{kk'q} \equiv \sum_B \langle A | \mathfrak{G}_i | B \rangle \langle B | a_k^* a_{k'} b_q | A \rangle e^{-\lambda(E_B - N_B \zeta)}$$

$$T_{kk'q} \equiv \sum_B \langle A | \mathfrak{G}_i | B \rangle \langle B | a_{k'}^* a_k b_q^* | A \rangle e^{-\lambda(E_B - N_B \zeta)}$$

for  $k \neq k'$ . Let

$$|A\rangle = |\dots, N_k, \dots, N_{k'}, \dots, n_q, \dots\rangle \quad (21)$$

Then there is just one state  $|B\rangle$  which contributes to  $S$  and  $T$ . Since

$$a_k |N_k\rangle = \sqrt{N_k} |1 - N_k\rangle; \quad a_k^* |N_k\rangle = \sqrt{1 - N_k} |1 - N_k + 1\rangle$$

$$b_q |n_q\rangle = \sqrt{n_q} |n_q - 1\rangle; \quad b_q^* |n_q\rangle = \sqrt{n_q + 1} |n_q + 1\rangle$$

it follows from (12) and (3), (9) that

$$S_{kk'q} = \langle k | C_q | k' \rangle^* (1 - N_k) N_{k'} n_q e^{-\lambda(E_A - N_A \zeta + W_k - W_{k'} - \omega_q)}$$

$$T_{kk'q} = \langle k | C_q | k' \rangle N_k (1 - N_{k'}) (n_q + 1) e^{-\lambda(E_A - N_A \zeta - W_k + W_{k'} + \omega_q)}$$

The case  $k = k'$  need not be considered since from gauge invariance it follows that  $\langle k | C_q | k \rangle = 0$  for  $\mathbf{q} \neq 0$ . Indeed, a shift of the coordinate system through  $\mathbf{R}_\alpha$  induces a gauge transformation

$$\mathbf{A}(\mathbf{x} - \mathbf{R}_\alpha) = \mathbf{A}(\mathbf{x}) + \frac{\partial \Lambda}{\partial \mathbf{x}}; \quad \psi(\mathbf{x} - \mathbf{R}_\alpha) = e^{i e \Lambda(\mathbf{x})} \psi(\mathbf{x})$$

with

$$\Lambda(\mathbf{x}) = \frac{1}{2} \mathbf{H}(\mathbf{x} \times \mathbf{R}_\alpha)$$

$\mathbf{A}(\mathbf{x})$  being given by (2.8). Therefore

$$\psi^*(\mathbf{x} - \mathbf{R}_\alpha) \mathbf{W}(\mathbf{x} - \mathbf{R}_\alpha) \psi(\mathbf{x} - \mathbf{R}_\alpha) = \psi^*(\mathbf{x}) \mathbf{W}(\mathbf{x} - \mathbf{R}_\alpha) \psi(\mathbf{x})$$

Integrating over the crystal volume (which here again is assumed to be infinite) it follows that

$$\int d^3 x \psi^*(\mathbf{x}) \sum_\alpha \mathbf{W}(\mathbf{x} - \mathbf{R}_\alpha) e^{i \mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_\alpha} \psi(\mathbf{x}) = \sum_\alpha e^{i \mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_\alpha} \int d^3 x \psi^*(\mathbf{x}) \mathbf{W}(\mathbf{x}) \psi(\mathbf{x})$$

which for  $\mathbf{q} \neq 0$  is zero on account of (A. 4). Thus

$$\left. \begin{aligned} \sum_B |\langle A | \mathfrak{G}_i | B \rangle|^2 e^{-\lambda(E_B - N_B \zeta)} &= e^{-\lambda(E_A - N_A \zeta)} \sum_k \sum_{k'} \sum_q |\langle k | C_q | k' \rangle|^2 \\ &\{ (1 - N_k) N_{k'} n_q e^{-\lambda(W_k - W_{k'} - \omega_q)} + N_k (1 - N_{k'}) (n_q + 1) e^{+\lambda(W_k - W_{k'} - \omega_q)} \} \end{aligned} \right\} \quad (22)$$

Since according to (21)

$$E_A = \sum_k N_k W_k + \sum_q n_q \omega_q \quad (23)$$

we have from (19), (14)

$$\left. \begin{aligned} e^{-\alpha \Omega_f} &= \prod_k \left( \sum_{N_k=0,1} e^{-\alpha (W_k - \zeta) N_k} \right) \prod_q \left( \sum_{n_q=0}^{\infty} e^{-\alpha \omega_q n_q} \right) = \\ &= \prod_k (1 + e^{-\alpha (W_k - \zeta)}) \prod_q (1 - e^{-\alpha \omega_q})^{-1} \end{aligned} \right\} \quad (24)$$

$$\text{or} \quad \Omega_f = -\frac{1}{\alpha} \sum_k \log(1 + e^{-\alpha(W_k - \zeta)}) + \frac{1}{\alpha} \sum_q \log(1 - e^{-\alpha\omega_q}) \quad (24')$$

Here the electron part (note that spin is neglected in (2)) is identical with  $V/2 \cdot \Omega$  as defined in (2.2, 4). With the help of eqs. (22), (23), (24), (19), eq. (20) can be written as

$$\begin{aligned} -\alpha \Omega' = & \sum_k \sum_{k'} \sum_q |(k|C_q|k')|^2 \sum_{N_k=0,1} \sum_{N_{k'}=0,1} \sum_{n_q=0}^{\infty} \left\{ (1 - N_k) \cdot \right. \\ & \cdot N_{k'} n_q \int_0^{\alpha} \lambda d\lambda e^{-\lambda(W_k - W_{k'} - \omega_q)} + N_k (1 - N_{k'}) (n_q + 1) \cdot \\ & \cdot \left. \int_0^{\alpha} \lambda d\lambda e^{+\lambda(W_k - W_{k'} - \omega_q)} \right\} \left[ \sum_{N_k=0,1} e^{-\alpha(W_k - \zeta) N_k} \cdot \right. \\ & \cdot \left. \sum_{N_{k'}=0,1} e^{-\alpha(W_{k'} - \zeta) N_{k'}} \sum_{n_q=0}^{\infty} e^{-\alpha\omega_q n_q} \right]^{-1} \end{aligned}$$

Introducing average occupation numbers

$$\bar{N}_k \equiv \sum_{N_k=0,1} N_k e^{-\alpha(W_k - \zeta) N_k} \left[ \sum_{N_k=0,1} e^{-\alpha(W_k - \zeta) N_k} \right]^{-1} = (e^{\alpha(W_k - \zeta)} + 1)^{-1} \equiv f(W_k) \quad (25)$$

$$\bar{n}_q \equiv \sum_{n_q=0}^{\infty} n_q e^{-\alpha\omega_q n_q} \left[ \sum_{n_q=0}^{\infty} e^{-\alpha\omega_q n_q} \right]^{-1} = (e^{\alpha\omega_q} - 1)^{-1} \equiv g(\omega_q) \quad (26)$$

(note that in (25)  $f$  is the Fermi function introduced in (4.1)) the last expression for  $-\alpha\Omega'$  becomes

$$\begin{aligned} -\alpha \Omega' = & \sum_k \sum_{k'} \sum_q |(k|C_q|k')|^2 \cdot \left\{ (1 - \bar{N}_n) \bar{N}_{k'} \bar{n}_q \int_0^{\alpha} \lambda d\lambda e^{-\lambda(W_k - W_{k'} - \omega_q)} + \right. \\ & \left. + \bar{N}_k (1 - \bar{N}_{k'}) (\bar{n}_q + 1) \int_0^{\alpha} \lambda d\lambda e^{+\lambda(W_k - W_{k'} - \omega_q)} \right\} \quad (27) \end{aligned}$$

This formula may be simplified further by exploiting the symmetry of  $C_q$  which in view of the relations

$$\omega_{\tilde{q}} = \omega_q; \quad \mathbf{e}_{\tilde{q}} = \mathbf{e}_q; \quad q \equiv (s, \mathbf{q}); \quad \tilde{q} \equiv (s, -\mathbf{q})$$

and of its definition (12') is

$$C_q^* = C_{\tilde{q}}$$

Thus

$$|(k|C_q|k')|^2 = |(k'|C_{\tilde{q}}|k)|^2$$

and after relabelling the summation indices in the second term of the curled bracket of (27) according to  $k \rightarrow k'$ ,  $k' \rightarrow k$ ,  $q \rightarrow \tilde{q}$  this formula simplifies to

$$-\alpha \mathcal{Q}' = \left. \begin{aligned} & \sum_k \sum_{k'} \sum_q |(k|C_q|k')|^2 (1 - \bar{N}_k) \bar{N}_{k'} \cdot \\ & \cdot \int_0^\alpha \lambda d\lambda e^{-\lambda(W_k - W_{k'})} \{ \bar{n}_q e^{+\lambda \omega_q} + (\bar{n}_q + 1) e^{-\lambda \omega_q} \} \end{aligned} \right\} \quad (28)$$

For the evaluation of  $\mathcal{Q}'$  as a perturbation expansion in the magnetic field it is important that eq. (28) may be rewritten in a form which is independent of the representation (2). In fact, with use of (25), (26) we can write

$$-\alpha \mathcal{Q}' = \left. \begin{aligned} & \sum_q \int_0^\alpha \lambda d\lambda \text{Trace} [(1 - f(\mathfrak{H})) e^{-\lambda \mathfrak{H}} \cdot \\ & \cdot C_q f(\mathfrak{H}) e^{+\lambda \mathfrak{H}} C_q^*] g(\omega_q) (e^{+\lambda \omega_q} + e^{(\alpha - \lambda) \omega_q}) \end{aligned} \right\} \quad (28')$$

where now the trace goes over one-electron states as in (2.2). The modification of the electronic thermodynamic potential  $\mathcal{Q}$ , eqs. (2.1, 2), due to the interaction with the phonons is

$$\frac{2}{v} \mathcal{Q}' = \mathcal{Q}_{int}^{(0)} - \frac{1}{2} \chi_{int} H^2 + \dots \quad (29)$$

where  $\chi_{int}$  is the additional susceptibility due to this interaction. The calculation of  $\mathcal{Q}'$  as a power series in the magnetic field  $H$  can, in principle, be carried through with the method used in ref. 1, writing the functions  $(1 - f(\mathfrak{H})) \cdot \exp(-\lambda \mathfrak{H})$  and  $f(\mathfrak{H}) \cdot \exp(+\lambda \mathfrak{H})$  in (28') as Cauchy integrals and making use of the expansion (2.6). The evaluation may again be carried out in the field free representation (2.7).

The matrix element of  $C_q$  in this representation is obtained by means of a reduction of the domain of integration to the cell  $\Omega_0$  using (A. 1, 2),

$$\begin{aligned} (2 G M \omega_q)^{\frac{1}{2}} (n \mathbf{k} | C_q | n' \mathbf{k}') &= \sum_\alpha e^{i \mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_\alpha} e_q (n \mathbf{k} | \mathbf{W}(\mathbf{x} - \mathbf{R}_\alpha) | n' \mathbf{k}') \\ &= \sum_\alpha \sum_\beta e^{i \mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_\alpha} e^{i (\mathbf{k}' - \mathbf{k}) \cdot \mathbf{R}_\beta} \int_{\Omega_0} d^3 x' u_{n \mathbf{k}}^* (\mathbf{x}') \\ &\quad \cdot u_{n' \mathbf{k}'} (\mathbf{x}') e^{i (\mathbf{k}' - \mathbf{k}) \cdot \mathbf{x}'} e_q \mathbf{W}(\mathbf{x}' + \mathbf{R}_\beta - \mathbf{R}_\alpha). \end{aligned}$$

With

$$\mathbf{R}_\beta - \mathbf{R}_\alpha = \mathbf{R}_\gamma$$

this may be written as

$$\begin{aligned} (2 G M \omega_q)^{\frac{1}{2}} (n \mathbf{k} | C_q | n' \mathbf{k}') &= \sum_\alpha e^{i (\mathbf{q} + \mathbf{k}' - \mathbf{k}) \cdot \mathbf{R}_\alpha} \\ &\quad \cdot \sum_\gamma \int_{\Omega_0} d^3 x' e^{i (\mathbf{k}' - \mathbf{k}) \cdot (\mathbf{x}' + \mathbf{R}_\gamma)} u_{n \mathbf{k}}^* u_{n' \mathbf{k}'} e_q \mathbf{W}(\mathbf{x}' + \mathbf{R}_\gamma) \end{aligned}$$



Making use of (A.4) and going back to the full domain of integration we obtain

$$(n \mathbf{k} | C_q | n' \mathbf{k}') = \frac{(2\pi)^3}{v} \delta(\mathbf{q} + \mathbf{k}' - \mathbf{k}) (2GM\omega_q)^{-\frac{1}{2}} e_q(n \mathbf{k} | W(\mathbf{x}) | n' \mathbf{k}') \quad (30)$$

### 3. Temperatur dependence of $\Omega'$

It is evident from eq. (28') that, due to the phonon variables but also to the  $\lambda$ -integration, a new type of temperature variation is present in  $\Omega'$ . With the use of (30) we may write eq. (28') as

$$\Omega' = - \frac{1}{\alpha} \int_0^\alpha \lambda d\lambda \sum_{s=1}^3 \int d^3 q \frac{e^{\lambda \omega_q} + e^{(\alpha-\lambda) \omega_q}}{e^{\alpha \omega_q} - 1} \cdot \frac{e_{qj} e_{qj'}}{\omega_q} T_{jj'}(\alpha, \lambda, \mathbf{q})$$

where  $e_{qj}$  is the  $j$ -component of the polarisation vector  $\mathbf{e}_q$ . To simplify the discussion we assume that

$$\omega_{s, \mathbf{q}} = c_s |\mathbf{q}|$$

$c_s$  being the velocity of phonons of mode  $s = 1, 2, 3$ . With the new variables

$$x \equiv \alpha \omega_q; \quad \xi \equiv \frac{\lambda}{\alpha}; \quad x_m \equiv \alpha \omega_m \cong \frac{\Theta}{T}$$

where  $\omega_m$  is the maximum frequency and  $\Theta$  the Debye temperature, we obtain

$$\Omega' = - \frac{1}{\alpha} \int_0^1 \xi d\xi \left( \sum_{s=1}^3 c_s^{-3} \right) \int_0^{x_m} x dx \frac{e^{\xi x} + e^{(1-\xi)x}}{e^x - 1} \oint d\Omega_q e_{qj} e_{qj'} T_{jj'}$$

In the temperature region of interest,  $\Theta \gg T$  holds, so that we can replace the limit of integration  $x_m$  by infinity. Now in tight binding approximation  $T_{jj'}$  does not depend on  $\mathbf{q}$  as is seen from (30), (28) and Appendix C of ref. 1, so that, recalling (7),

$$\Omega' = - \frac{1}{\alpha} \cdot \frac{4\pi}{3} \sum_{s=1}^3 c_s^{-3} \int_0^1 \xi d\xi \sum_{j=1}^3 T_{jj}(\alpha, \xi, \alpha) \int_0^\infty x dx \frac{e^{\xi x} + e^{(1-\xi)x}}{e^x - 1}$$

Thus  $\Omega'$  contains an overall factor  $1/\alpha = kT$  in addition to the dependence of  $T_{jj}$  on  $\alpha$ . According to (29) the same is true for  $\chi_{int}$ , so that

$$\chi_{total} = \chi + \chi_{int} \quad (31)$$

is likely to account for the behaviour (1).

### References

- 1) C. P. ENZ, preceeding paper.
- 2) G. A. BUSCH, in «Halbleiter und Phosphore», edited by M. Schön and H. Welker (Braunschweig 1958), p. 158; G. A. BUSCH and R. KERN, *Helv. Phys. Acta* 32, 24 (1959).
- 3) J. A. KRUMHANS and H. BROOKS, *Bull. Amer. Phys. Soc.* 7, 117, F 5 (1956).
- 4) C. P. ENZ, *Nuovo Cimento* 6, Supplemento, p. 1224 (1957).
- 5) H. Y. FAN, *Phys. Rev.* 82, 900 (1951); T. MUTO and S. OYAMA, *Progr. Theor. Phys.* 5, 833 (1950) and 6, 61 (1951).
- 6) R. E. PEIERLS, *Quantum Theory of Solids* (Oxford 1955).

## Les paramètres du réseau et la densité du rubis

par J.-P. Jan, S. Steinemann et P. Dinichert

Laboratoire suisse de recherches horlogères, Neuchâtel

(21 IX 1959)

*Summary.* The density and lattice parameters of artificial ruby have been measured as functions of chromium concentration between 0 and 2 wt. % Cr. They were found to increase linearly with the chromium concentration. Within the limits of experimental error, the X-ray densities are equal to the measured densities. The agreement between calculated and measured density changes confirms the substitutional character of chromium. The continuum elastic theory of lattice defects predicts the correct order of magnitude for the expansion of the lattice.

### 1. Introduction

Le corindon est de l'oxyde d'aluminium  $\text{Al}_2\text{O}_3$ - $\alpha$  cristallisé. Le remplacement, dans le réseau cristallin, de quelques ions  $\text{Al}^{+++}$  par des ions  $\text{Cr}^{+++}$  donne le rubis.

Les ions  $\text{Cr}^{+++}$  étant plus gros que les ions  $\text{Al}^{+++}$ , leur présence entraîne une dilatation du réseau. L'étude expérimentale de cette dilatation est intéressante du point de vue de la théorie des défauts ponctuels dans les solides, particulièrement aux faibles concentrations de chrome, qui sont justement réalisées dans les rubis synthétiques (0-2% en poids).

Les mesures de paramètres du réseau sont complétées tout naturellement par des mesures de densité, dont les résultats peuvent être comparés aux densités roentgenographiques. L'adjonction de chrome, dont la masse atomique est supérieure à celle de l'aluminium, produit un accroissement de densité, partiellement compensé, il est vrai, par la dilatation du réseau.

A quelques exceptions près, les mesures antérieures sont rares et peu précises, dans le domaine des faibles teneurs en chrome. Les seules qui portent sur un bon nombre de monocristaux contenant moins de 2% de chrome en poids sont les mesures de densité de SLAVNOVA et SONIN<sup>1)</sup>, mais leur précision laisse à désirer. Les mesures de THILO, JANDER et SEEMANN<sup>2)</sup> portent sur l'ensemble du système  $\text{Al}_2\text{O}_3$ - $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ; ces auteurs ont étudié, sur des échantillons polycristallins frittés, un certain nombre de propriétés physiques, en particulier la densité et les paramètres du réseau. Ils affirment que ces derniers ne varient pas jusqu'à 8% molaire de  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ , résultat en désaccord avec ceux du présent travail et de tous les autres travaux que nous connaissons, en particulier avec les mesures précises de SHAL'NIKOVA et YAKOVLEV<sup>3)</sup>.

Notre étude concerne essentiellement les variations des paramètres du réseau et de la densité en fonction de la teneur en chrome, dans le domaine s'étendant de 0 à 2% moléculaire de  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ , ce pourcentage étant pratiquement égal au pourcentage de chrome en poids. Nous n'avons pas cherché à obtenir le maximum de précision sur les valeurs absolues de ces grandeurs. Les échantillons étudiés étaient des monocristaux de série industrielle courante. Les adjonctions autres que le chrome, éventuellement présentes dans ces monocristaux, sont en quantité trop faible pour influencer les résultats.

L'expérience montre que les paramètres  $a$  et  $c$  de la maille hexagonale du réseau cristallin sont des fonctions linéaires de la concentration en chrome aux faibles teneurs, soit

$$a = a_0 (1 + \alpha C_m) \quad c = c_0 (1 + \gamma C_m), \quad (1)$$

où  $a_0$  et  $c_0$  sont les paramètres du corindon,  $C_m$  la concentration moléculaire en  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ , et  $\alpha$  et  $\gamma$  les variations relatives des paramètres par unité de concentration. La densité  $\varrho$  s'écrit de même

$$\varrho = \varrho_0 (1 + k C_m), \quad (2)$$

où  $\varrho_0$  est la densité du corindon, et  $k$  la variation relative de densité par unité de concentration.

La densité röntgenographique  $\varrho_r$  se calcule à partir des paramètres du réseau mesurés au moyen des rayons X, et correspond à un cristal idéal:

$$\varrho_r = \frac{4\sqrt{3} M}{a^2 c N}, \quad (3)$$

où  $M$  est la masse moléculaire moyenne et  $N$  le nombre d'Avogadro. Un développement de cette formule, limité à la première puissance de  $C_m$ , donne, après introduction des valeurs appropriées des constantes physiques,

$$\varrho_r = \varrho_{0r} [1 + (0,491 - 2\alpha - \gamma) C_m], \quad (4)$$

$\varrho_{0r}$  étant la densité röntgenographique du corindon.

Cette dernière expression montre clairement la contribution positive due à la masse du chrome et la contribution négative due au gonflement de la maille cristalline. Les formules (3) et (4) sont établies en admettant que le chrome se substitue à l'aluminium dans le réseau, et que les rayons X mesurent la moyenne arithmétique des paramètres du réseau, qui varient localement.

## 2. Mesures de paramètres du réseau

Les mesures de paramètres du réseau ont été effectuées sur un premier lot de 7 pierres, au moyen de la diffraction des rayons X sur la matière pulvérisée.

Une première série de résultats a été obtenue à l'aide d'une chambre Seemann-Bohlin de 57 mm de diamètre, de la poudre d'aluminium mêlée au rubis servant de témoin. L'utilisation de diverses anticathodes a permis de mesurer onze distances interréticulaires, à partir desquelles les deux paramètres du réseau ont été calculés par la méthode des moindres carrés. Dans une seconde série de mesures, nous nous sommes servis d'un diffractomètre enregistreur Philips et de poudre de zinc comme témoin. Les paramètres du réseau ont été calculés à partir de six distances interréticulaires.

Il existe entre les résultats des deux méthodes de faibles écarts systématiques, qui affectent peu les variations relatives de paramètre nous

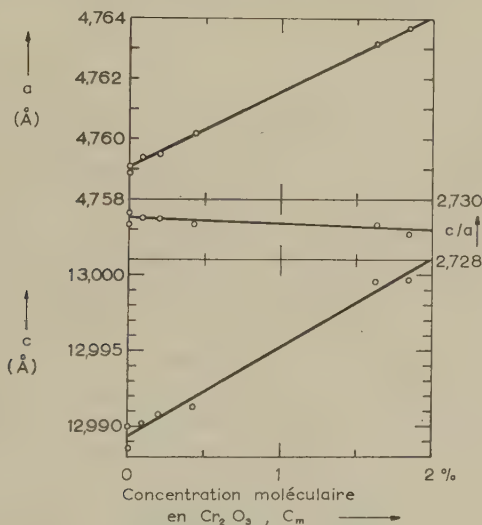


Fig. 1

Paramètres du réseau du rubis à 25°C en fonction de la teneur en chrome

intéressant ici. Les moyennes des deux séries de mesures, réduites à 25°C, sont représentées sur la figure 1 et peuvent se décrire par les formules

$$\left. \begin{aligned} a &= 4,7591 (1 + 0,0527 C_m) \text{ Å} \\ &\quad \pm 0,0004 \quad \pm 0,0016 \\ c &= 12,9894 (1 + 0,0452 C_m) \text{ Å} \\ &\quad \pm 0,0030 \quad \pm 0,0030 \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

Les teneurs en chrome ont été déterminées par analyse chimique, sur les poudres mêmes ayant servi aux mesures. Les teneurs relativement élevées ont été déterminées par titrage potentiométrique, et les teneurs faibles, par une méthode colorimétrique.

Un contrôle a été effectué sur les pierres d'un deuxième lot, pulvérisées après avoir servi aux mesures de densité. Il porte sur la mesure de la distance interréticulaire des plans (416) avec le rayonnement  $K\alpha_1$  du nickel. Cette raie convient particulièrement bien, car elle correspond pour le corindon à un angle de Bragg de  $86,4^\circ$  et elle est intense. Les résultats fournis par un montage à film plan, situé à 10 cm de l'échantillon, s'expriment à  $25^\circ\text{C}$  par la formule

$$d_{416} = 0,83052 (1 + 0,0516 C_m) \text{ \AA}, \quad (6)$$

alors que le calcul à partir des formules (5) donne

$$d_{416} = 0,83056 (1 + 0,0516 C_m) \text{ \AA}. \quad (7)$$

La concordance est excellente.

Une partie de nos échantillons ont été examinés au microscope électronique. Nos poudres se sont révélées constituées de grains de tailles fort variables, comprises entre 0,5 et 50 microns; les particules de 1–5 microns sont les plus fréquentes et constituent probablement une moyenne. On trouve de nombreuses plaquettes minces, de 100–2000 Å d'épaisseur, et des éclats en forme de coin à faible ouverture. La cristallisation est assez bonne, comme le révèle l'examen en diffraction électronique. Un certain élargissement des raies de diffraction de rayons X semble dû à la taille des grains plutôt qu'à des tensions internes. Cet élargissement ne provient certainement pas des déformations locales du réseau dues au chrome, car il s'observe aussi dans le corindon, et de toute façon, on sait que les déformations dues à des défauts ponctuels ne modifient que la position et l'intensité des raies de diffraction sans altérer leur largeur<sup>4</sup>).

### 3. Mesures de densité

Les mesures de densité ont été effectuées à la balance hydrostatique sur un second lot comprenant 13 pierres. Des échantillons pesant 4 g environ ont été coupés au centre des «boules», région où la teneur en chrome est pratiquement uniforme. Ces mêmes échantillons ont servi à la détermination chimique de la teneur en chrome. Les pesées ont été effectuées sur une balance Mettler sensible au microgramme, dans de l'eau distillée, dans du bromoforme (densité à  $20^\circ\text{C}$ :  $2,892\text{ g/cm}^3$ ), et dans une solution aqueuse de Nonic 218 à 0,5 g/l présentant une faible tension superficielle. La densité et le coefficient de dilatation de ces deux derniers liquides avaient été déterminés au préalable. Les variations de température du fluide durant les pesées ont été mesurées à  $0,01^\circ\text{C}$  près au moyen d'un couple thermoélectrique.

Nous avons observé des écarts systématiques de quelques dixièmes de pour-mille entre les mesures dans les différents fluides. Ces écarts, attri-



bués à des erreurs sur les densités du bromoforme et de la solution de Nonic, n'affectent pas les variations de densité qui nous intéressent ici, et nous avons ramené les valeurs obtenues dans ces deux liquides aux

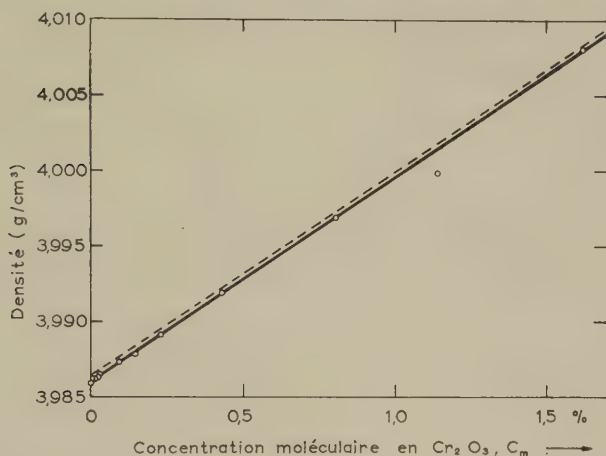


Fig. 2

Densité du rubis à 25°C en fonction de la teneur en chrome. La droite en pointillés représente la densité roentgenographique

résultats fournis par les mesures dans l'eau distillée. Les moyennes ainsi réduites sont représentées, pour 25°C, dans la figure 2, et s'expriment par la formule

$$\rho = 3,9860 (1 + 0,341 C_m) \text{ g/cm}^3. \quad (8)$$

$$\pm 0,0004 \quad \pm 0,003$$

Un point, correspondant à 1,14% de  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ , s'écarte anormalement de la ligne droite et n'a pas été pris en considération dans les calculs. L'échantillon était peut-être poreux.

#### 4. Discussion

La densité roentgenographique, calculée à partir des formules (3), (4) et (5), vaut, à 25°C,

$$\rho_r = 3,9864 (1 + 0,340 C_m) \text{ g/cm}^3. \quad (9)$$

$$\pm 0,0020 \quad \pm 0,006$$

L'incertitude sur la densité roentgenographique du corindon provient surtout des incertitudes sur les paramètres du réseau. L'accord avec les densités mesurées est excellent tant en ce qui concerne les variations en fonction de la teneur en chrome qu'en ce qui concerne les valeurs absolues. Bien que le but de ce travail soit avant tout l'étude des variations, l'accord des valeurs absolues vaut la peine qu'on s'y arrête. Certains

cristaux présentent des écarts à la stoechiométrie, ce qui entraîne un écart entre les densités roentgenographique et réelle. SCOTT<sup>5</sup> a préparé de nombreux monocristaux d'oxydes métalliques, par un procédé de fusion dans la flamme, analogue à celui de Verneuil utilisé pour les pierres artificielles; tous les cristaux étudiés présentaient des écarts à la stoechiométrie, à l'exception de l'oxyde d'aluminium, ce qui justifierait l'accord des densités.

Remarquons encore que les valeurs adoptées pour les constantes physiques influencent la densité roentgenographique. Cette question a été discutée en particulier par SMAKULA, KALNAJS et SILS<sup>6</sup>). Dans notre cas, il a été fait usage de valeurs récentes des masses atomiques<sup>7</sup>), du nombre d'Avogadro<sup>8</sup>) et des longueurs d'onde de rayons X converties en Angströms<sup>9</sup>). L'emploi du nombre d'Avogadro et de la masse atomique de l'aluminium utilisés par SMAKULA *et al.* ne modifient pas nos résultats.

L'accord entre les *variations* de densité calculée et mesurée est une preuve de la présence du chrome en position de substitution.

La variation de densité est en bon accord avec les résultats de SLAVNOVA et SONIN<sup>1</sup>), mais en désaccord avec ceux de THILO *et al.*<sup>2</sup>). La densité du corindon est en bon accord avec les résultats de PRIMAK et DAY<sup>10</sup>), obtenus par flottaison.

Les variations de paramètre du réseau sont les mêmes, aux erreurs d'expérience près, que celles trouvées par SHAL'NIKOVA et YAKOVLEV<sup>3</sup>) sur trois pierres à faible concentration en chrome, et en désaccord avec les résultats de THILO *et al.*<sup>2</sup>), qui trouvent une variation nulle. Signalons encore que les paramètres du réseau du corindon sont en parfait accord avec ceux que donnent SWANSON et FUYAT<sup>11</sup>).

Il est intéressant de comparer nos résultats à ceux de théories existantes. Nous nous basons sur la théorie d'un milieu élastique, continu et isotrope, telle qu'elle est exposée par ESHELBY<sup>12</sup>). Elle prédit la variation de volume  $\Delta V$  d'un solide, causée par l'introduction de  $n$  inclusions sphériques de volume  $V'$  dans des cavités sphériques de volume  $V$ :

$$\Delta V = n \frac{\beta}{\beta'} (V' - V) \quad (10)$$

$$\text{avec } \beta = \frac{3B+4G}{3B}, \beta' = \frac{3B'+4G}{3B'}. \quad (11)$$

$G$  est le module de glissement du solide,  $B$  est son module de compressibilité, et  $B'$ , celui de l'inclusion. Si le solide et l'inclusion ont le même module de compressibilité, la dilatation ne dépend plus des constantes élastiques. Ces résultats ressortent également de calculs de déformations et tensions dans les rubis, effectués par l'un de nous<sup>13</sup>).

Remarquons que la formule (10) est établie en tenant compte, dans le calcul, de termes dits «image», qui interviennent lorsqu'on considère un

milieu fini. La nécessité de tenir compte de ces termes n'a pas toujours été reconnue. Or, si l'on en faisait abstraction, il apparaîtrait un important désaccord avec nos mesures.

La validité d'une théorie élastique à l'échelle moléculaire, comme le choix des volumes  $V$  et  $V'$ , pourraient faire l'objet d'une longue discussion. Admettons simplement<sup>13)</sup> que les inclusions sont ici équivalentes à des molécules ou groupes de molécules de  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  remplaçant  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . La variation relative du volume  $V_0$  du corindon est alors

$$\frac{\Delta V}{V_0} = C_m \frac{\beta}{\beta'} \frac{V' - V}{V}, \quad (12)$$

où  $V$  est le volume moyen occupé par une molécule  $\text{Al}_2\text{O}_3$  dans le corindon ( $42,46 \text{ \AA}^3$ ), et  $V'$  le même volume dans  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  ( $48,12 \text{ \AA}^3$ )<sup>14)</sup>. Nos mesures ont conduit à

$$\frac{1}{C_m} \frac{\Delta V}{V_0} = 2\alpha + \gamma = 0,151 \pm 0,006, \quad (13)$$

alors que la théorie prédit

$$\frac{1}{C_m} \frac{\Delta V}{V_0} = 0,133 \cdot \frac{\beta}{\beta'}. \quad (14)$$

En admettant que  $\text{Al}_2\text{O}_3$  et  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  aient la même compressibilité, la théorie donne déjà un ordre de grandeur correct. La comparaison à la théorie ne peut malheureusement pas être poussée plus loin, car le module de compressibilité de  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ , à notre connaissance, ne se trouve pas dans la littérature. En adoptant pour le corindon  $B = 23 \cdot 10^{11} \text{ dyne/cm}^2$  et  $G = 19 \cdot 10^{11} \text{ dyne/cm}^2$ , valeurs moyennes selon diverses mesures récentes<sup>15) - 19)</sup>, il faudrait donner à  $B'$  la valeur  $29 \cdot 10^{11} \text{ dyne/cm}^2$  pour retomber sur notre résultat: l'oxyde de chrome  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  serait moins compressible que l'oxyde d'aluminium  $\text{Al}_2\text{O}_3$ .

Monsieur J. D. ESHELBY a eu l'amabilité d'attirer l'attention des auteurs sur l'aspect théorique de l'anisotropie des variations de paramètre du réseau. Si le chrome peut être assimilé à des défauts ponctuels équivalents à un système de forces symétriques, on devrait avoir

$$\frac{\gamma}{\alpha} = \frac{2 s_{13} + s_{33}}{s_{11} + s_{12} + s_{13}}, \quad (15)$$

les  $s_{ik}$  étant les coefficients d'élasticité du corindon monocristallin. Nos expériences ont donné

$$\frac{\gamma}{\alpha} = 0,86 \pm 0,08, \quad (16)$$

alors que la valeur théorique varie considérablement selon les auteurs: elle serait de 0,80 pour le corindon naturel<sup>15)</sup> et de 0,89 pour le corindon artificiel<sup>16)</sup> selon des mesures d'auteurs indiens souvent citées<sup>17) 18)</sup>; des mesures plus récentes de MAYER et HIEDEMANN<sup>19)</sup>, effectuées par deux méthodes différentes, conduisent à 0,99 et 1,12, cette dernière valeur étant la plus sûre des deux. Les coefficients d'élasticité du corindon

ne sont donc malheureusement pas connus avec une précision suffisante pour permettre de conclure quoi que ce soit. On pourrait être tenté de rapprocher notre résultat de celui des auteurs indiens, mais il convient de préciser que l'équation (15) n'est plus valable si le système de forces n'est pas symétrique.

### 5. Conclusions

En conclusion, nous pouvons affirmer que les mesures présentées ci-dessus ont permis d'établir que:

1° La densité et les paramètres du réseau du rubis sont des fonctions linéaires de la teneur en chrome.

2° Aux erreurs d'expérience près, les densités roentgenographiques sont égales aux densités mesurées. Du point de vue des variations de densité, ce résultat est une preuve supplémentaire que le chrome se trouve en position de substitution.

3° La théorie continue élastique prédit un ordre de grandeur raisonnable des phénomènes.

Les auteurs tiennent à exprimer leurs vifs remerciements à MM. RE-NAUD et DELALOYE, chimistes du Laboratoire, pour la détermination de la teneur en chrome des rubis. Leurs remerciements s'adressent également à la maison DJÉVAHIRDJIAN S.A. de Monthey, qui a fourni gracieusement les échantillons étudiés.

### Bibliographie

- 1) E. N. SLAVNOVA et I. N. SONIN, *Trudy Inst. Kristallogr. Akad. Nauk S.S.S.R.* No. 8, 35 (1953).
- 2) E. THILO, J. JANDER et H. SEEMANN, *Z. anorg. u. allgem. Chem.* 279, 2 (1955).
- 3) N. A. SHAL'NIKOVA et I. A. YAKOVLEV, *Kristallografiya* 1, 531 (1956).
- 4) K. HUANG, *Proc. Roy. Soc. (London)* A 190, 102 (1947).
- 5) E. J. SCOTT, *J. Chem. Phys.* 23, 2459 (1955).
- 6) A. SMAKULA, J. KALNAJS et V. SILS, *Phys. Rev.* 99, 1747 (1955).
- 7) E. WICHERS, *J. Amer. Chem. Soc.* 78, 3235 (1956).
- 8) E. R. COHEN, K. M. CROWE et J. W. M. DuMOND, *The Fundamental Constants of Physics*, Interscience Publishers Inc., New York 1957.
- 9) C. S. BARRETT, *Structure of Metals*, 2nd edition, McGraw Hill Inc., New York 1952.
- 10) W. PRIMAK et P. DAY, *Anal. Chem.* 26, 1515 (1954).
- 11) H. E. SWANSON et R. K. FUYAT, *Standard X-ray Diffraction Powder Patterns*, National Bureau of Standards Circular 539, Vol. II, 1953.
- 12) J. D. ESHELBY, *Solid State Physics* 3, 79 (1956).
- 13) P. DINICHERT, *Helv. Phys. Acta* 30, 463 (1957); *Bull. Soc. Suisse Chron.* 4, 94 (1957), et *Journal suisse d'horlogerie*, éd. suisse, p. 228 (Nov.-déc. 1957).
- 14) H. E. SWANSON, N. T. GILFRICH et G. M. UGRINIC, *Standard X-ray Diffraction Powder Patterns*, National Bureau of Standards Circular 539, Vol. V, 1955.
- 15) J. BHIMASENACHAR, *Current Science* 18, 372 (1949).
- 16) R. V. G. SUNDARA RAO, *Proc. Indian Acad. Sci.* 29A, 352 (1949).
- 17) H. B. HUNTINGTON, *Solid State Physics* 7, 213 (1958).
- 18) R. S. KRISHMAN, editor, *Progress in Crystal Physics*, Vol. I, S. Viswanathan, Chetput, Madras, India, 1958.
- 19) W. G. MAYER et E. A. HIEDEMANN, *J. Acoust. Soc. Amer.* 30, 756 (1958); *Acta Cryst.* 12, 1 (1959).

## On the breadths of annihilation lines in copper and in gold

by **Bronisław Średniawa<sup>1)</sup>**

University of Zurich

(7. X. 1959)

*Summary.* The breadths of annihilation lines produced in the annihilation process of electrons and positrons are calculated for copper and gold. Two models are considered: 1<sup>0</sup> The Fermi gas model of conduction electrons and  $\text{Cu}^+$  or  $\text{Au}^+$  ions and 2<sup>0</sup> The model where the atoms exist complete in the crystal, but where, however, owing to the influence of the crystal the outer shell 4 s of Cu is so much compressed that it overlaps with the 3d shell (and for Au the 6 s shell overlaps with the 5 d shell). The breadths due to conducting electrons and the electrons in different shells of the Cu and Au ions are calculated. By comparison of the results with the experimental data it is shown that in the first model the contribution of conducting electrons to the breadth of the annihilation line is negligible. For both models the largest contribution stems from the most external complete shell but in Cu about 5% and in Au about 40–50% of the annihilations take place in the next inner shells of the atoms.

### § 1. Introduction

The purpose of the present paper is the theoretical investigation of the shape of the lines of  $\gamma$  radiation produced in the process of annihilation of positrons for the examples copper and gold. Precision measurements of the shape of the annihilation line in copper were made by DU MOND, LIND and WATSON (DU MOND 1954) with a crystal spectrometer. They used an activated copper sample in which  $\beta$ -radioactive  $\text{Cu}^{64}$  atoms were present. The positrons produced in  $\beta$  decay (having a maximum initial energy of 0,66 MeV) annihilate with the electrons in the sample giving rise to the annihilation line.

According to HEITLER (1954 p. 270) the probability of annihilation of fast positrons is small, so that 98% of the positrons are stopped (or slowed down to thermal velocities, which we neglect) by collisions with the electrostatic fields of nuclei before being annihilated. These positrons annihilate then with the slow conduction electrons or with electrons of different atomic shells. The center of mass of the annihilating pair moves with the velocity of half the velocity of the electron, so that in the laboratory system the annihilation photons have slightly different wave lengths

---

<sup>1)</sup> On leave of absence from the Physical Institute of the Jagiellonian University of Cracow.



and therefore the annihilation line exhibits a certain structure owing to Doppler broadenings of different orders of magnitude. DU MOND and al. also made a rough estimate of these Doppler broadenings to annihilations in different electron shells.

Since the annihilating electrons are moving, the two annihilation photons are emitted at angles slightly different from  $\pi$ . DE BENEDETTI, COWAN, KONNECKER, and PRIMAKOFF (DE BENEDETTI 1949) have measured the departure from antiparallelism of the two photons in the process of pair annihilation in gold and have, therefrom calculated the mean momentum of the center of mass of the annihilating pair.

The main result of both these papers was the statement that almost all the positrons are slowed down to thermal velocities in the sample and then annihilate with the conduction electrons.

In this paper two extreme models are considered. In the first the metal consists of  $\text{Cu}^+$  or  $\text{Au}^+$  ions and a degenerate Fermi gas containing the conduction electrons. In the second model atoms exist complete but, however, according to KRUTTER (1935) owing to the influence of the crystal the outer 4 s shell for Cu is so much compressed that it overlaps with the 3 d shell (and for Au, the 6 s shell overlaps with the 5 d shell). In both cases the positrons are assumed to be stopped before annihilation. In the process of annihilation both the electron and the positron may be regarded as free particles; since they have equal and opposite charges the electrostatic potential of the nuclear field has no influence on the energies of the annihilation photons. We neglect the cases when positronium is formed before annihilation.

In § 2 we calculate the annihilation rate of a moving free electron annihilating with a positron at rest. Afterwards (§ 3) we expand the wave function of an atomic electron into plane waves and calculate the rate of annihilation of the positron at rest with the electron having this wave function. In § 4 and 5 we apply the formulae of § 3 to calculate the annihilation rates for different shells and the conducting electrons in copper and gold and compare them with experimental data. § 6 contains the results and discussion.

## § 2. Annihilation of a free electron and a free positron in the system where the positron is at rest

We consider a free electron with momentum  $\mathbf{p}$  and energy  $E$  annihilating with a positron at rest. The two emitted annihilation photons have momenta  $\mathbf{k}_1$  and  $\mathbf{k}_2$ . Since both particles considered are free, energy and momentum are conserved

$$\mathbf{p} = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 \quad (1)$$

$$E + \mu = k_1 + k_2, \quad E = \sqrt{p^2 + \mu^2} \quad (2)$$

The transition probability from the initial state 0 (electron  $\mathbf{p}$ , a hole at rest) to the final state  $F$  is derived from the compound matrix element  $K_{FO}$ . Using standard methods and the notation given by HEITLER (1954, p. 213–219) this is given by

$$K_{FO} = \frac{e^2 (2\pi \hbar^2 c^2)}{2\mu \sqrt{k_1 k_2}} \langle u_F^* \{ \alpha_1 \alpha_{k_1} \alpha_2 + \alpha_2 \alpha_{k_2} \alpha_1 + 2 \mathbf{e}_1 \cdot \mathbf{e}_2 \} u_0 \rangle$$

where

$$\alpha_{k_1} \equiv \frac{\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{k}_1}{k_1} \quad \text{etc.}$$

As we are not interested in the probability of annihilation of an electron and a positron with definite spins we average over their spin directions. The transition probability to the final state with definite directions of polarisation of both annihilation photons is given by

$$w = \frac{2\pi}{\hbar} \left( \frac{1}{4} S_F S_0 |K_{FO}|^2 \right) \varrho_F$$

where  $\varrho_F$  denotes the number of final states per energy intervall  $dE_F$ . The final state is completely determined by  $k_1$  and the angle  $\beta$  between  $\mathbf{k}_1$  and  $\mathbf{p}$ . Therefore we have

$$\varrho_F dE_F = \varrho_{k_1} dk_1, \quad \varrho_{k_1} = \frac{d\Omega k_1^2}{(2\pi \hbar c)^3} \quad (3)$$

From the conservation laws (1) and (2) we have

$$k_1 (\mu + E - p \cos \beta) = \mu (\mu + E) = \mu (k_1 + k_2) \quad (4)$$

and 
$$E_F = k_1 + k_2 = k_1 + \sqrt{p^2 - 2k_1 p \cos \beta + k_1^2}$$

so that

$$\left( \frac{\partial k_1}{\partial E_F} \right)_\beta = \frac{k_1 k_2}{\mu (k_1 + k_2)} \quad (5)$$

Hence from (3) and (5):

$$\varrho_F = \varrho_{k_1} \left( \frac{\partial k_1}{\partial E_F} \right)_\beta = \frac{1}{(2\pi \hbar c)^3} \frac{k_1^3 k_2}{\mu (k_1 + k_2)} d\Omega$$

Applying the usual methods of evaluating the S-sums we obtain ( $r_0 = e^2/\mu$ )

$$w = \frac{c r_0^2 d\Omega k_1^2}{8 E (k_1 + k_2)} \left( -4 \cos^2 \Theta + \frac{k_1}{k_2} + \frac{k_2}{k_1} \right) \quad (6)$$

where  $\Theta$  is the angle between  $\mathbf{e}$ , and  $\mathbf{e}_2$ . If there are  $N$  electrons and  $N_+$  positrons in the cube (of volume  $1 \text{ cm}^3$ ) the rate of annihilation is

$$dR' = \frac{N N_+ c r_0^2 d\Omega k_1^2}{8 E (k_1 + k_2)} \left( -4 \cos^2 \Theta + \frac{k_1}{k_2} + \frac{k_2}{k_1} \right) \quad (7)$$

As we do not want to deal with polarized photons we shall sum (7) over both polarizations of both photons. The annihilation rate into unpolarized photons is

$$dR'' = \frac{1}{2E} N N_+ c v_0^2 d\Omega \frac{k_1^2}{k_1 + k_2} \left( \frac{k_1}{k_2} + \frac{k_2}{k_1} + \sin^2 o \right)$$

where  $o$  is the angle between  $\mathbf{k}_1$  and  $\mathbf{k}_2$ .

Because of the conservation laws (1) and (2)  $k_1$ ,  $k_2$ ,  $E$  and  $o$  are not independent. We can express, therefore, the annihilation rate as a function of  $P \equiv p/\mu$  and  $K \equiv k_1/\mu$  only:

$$dR'' = \frac{N N_+ c v_0^2 d\Omega K^2}{2(\sqrt{1+P^2+1})\sqrt{P^2+1}} \left\{ \frac{K^2+2K-2}{\sqrt{1+P^2+1}-K} + \frac{\sqrt{P^2+1}+3-K}{K} - \frac{1}{K^2} - \frac{1}{(\sqrt{1+P^2+1}-K)^2} \right\} \quad (8)$$

We shall call  $K$  and  $P$  the reduced momenta.

Owing to the conservation laws,  $K$  can, for a given  $P$ , only vary within certain limits. Since in formula (4) the angle  $\beta$  is arbitrary we have

$$K_{min} \equiv \frac{1+\sqrt{P^2+1}}{1+\sqrt{P^2+1}+P} \leq K \leq \frac{1+\sqrt{P^2+1}}{1+\sqrt{P^2+1}-P} \equiv K_{max} \quad (9)$$

For  $P = 0$  we have  $K = 1$  only, for  $P \rightarrow \infty$

$K_{min} \rightarrow 1/2$ ,  $K_{max} \rightarrow \infty$  (see Fig. 1).

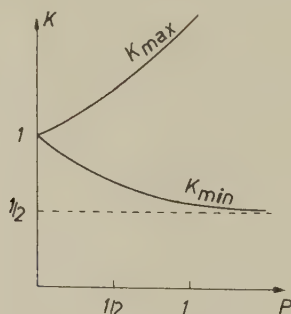


Fig. 1

### § 3. Annihilation of a positron at rest with a bound electron

Since the electron and positron have equal and opposite charges the electrostatic potential of the nucleus plays no rôle in the annihilation process and we can treat the particles as free. In order to calculate the annihilation rate with a bound electron we expand the wave function of the electron into plane waves and apply formula (8) to each component.

In the non-relativistic (N. R.) approximation the expansion into plane waves is

$$\psi_{Dirac}(\mathbf{r}, t) = \int \frac{d^3p}{(2\pi\hbar c)^{3/2}} u e^{\frac{c}{\hbar}(\mathbf{p} \cdot \mathbf{r} - Et)} C(\mathbf{p}) \quad (10)$$

where  $u$  is the spinor,  $u = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$

and

$$C(\mathbf{p}) = \frac{1}{(2\mu\hbar c)^{3/2}} \int \psi_{Schröd.}(\mathbf{r}, t) e^{-i\frac{\mathbf{p} \cdot \mathbf{r}}{\hbar c}} d^3x \quad (10')$$

$C(\mathbf{p})$  is normalized.

The probability for the electron to have the momentum between  $\mathbf{p}$  and  $\mathbf{p} + d\mathbf{p}$  is  $|C(\mathbf{p})|^2 d^3p$  and the number of electrons having the reduced momenta between  $\mathbf{P}$  and  $\mathbf{P} + d\mathbf{P}$  is

$$N |C(\mathbf{P})|^2 d^3P \quad (11)$$

where

$$C(\mathbf{P}) = \mu^{3/2} C(\mathbf{p}/\mu)$$

The annihilation rate coming from electrons with reduced momenta between  $\mathbf{P}$  and  $\mathbf{P} + d\mathbf{P}$  is (from (8) and (11)) in the N. R. approximation ( $P^2 \ll 1$ ): equal to

$$dR'' = \frac{1}{4} N N_+ c r_0^2 d\Omega K^2 \left\{ \frac{K^2 - 2K - 2}{2 - K} + \frac{4 - K}{K} - \frac{1}{K^2} - \frac{1}{(2 - K)^2} \right\} |C(\mathbf{P})|^2 d^3P \quad (12)$$

where  $K$  fulfills the inequalities

$$\frac{1}{1 + \frac{P}{2}} \leq K \leq \frac{1}{1 - \frac{P}{2}} \quad (13)$$

The total annihilation rate for a given  $K$  is obtained by integrating (12) over all possible  $P$  corresponding to this  $K$  i.e. from  $P_{min} = 2|K - 1|/K$  to infinity as follows from (13) (see Fig. 1). Actually it is not quite correct to integrate over  $P$  to infinity because we use the non relativistic approximation, but for the cases considered in this paper  $|C(\mathbf{P})|^2$  vanishes so quickly that we do not make a considerable error. We have, therefore, the annihilation rate

$$R = \frac{1}{4} N N_+ c r_0^2 d\Omega K^2 \left\{ \frac{K^2 - 2K - 2}{2 - K} + \frac{4 - K}{K} - \frac{1}{K^2} - \frac{1}{(2 - K)^2} \right\} \int_{2|K-1|/K}^{\infty} |C(\mathbf{P})|^2 d^3P \quad (14)$$

### § 4. Annihilation in copper

We now consider the case of copper. We consider the two limiting models mentioned in the introduction.

1. The Fermi-gas model. The metal is composed of  $\text{Cu}^+$  ions and conducting electrons forming a totally degenerate Fermigas and possessing therefore the distribution function

$$C(P) = \begin{cases} 1 & \text{for } 0 \leq P \leq P' \\ 0 & \text{for } P > P' \end{cases} \quad (15)$$

From the value 7.04 eV for the maximum energy of the conduction electrons in copper at zero temperature (SEITZ, 1943, p. 146) we obtain the value of  $P' = 1.4 \cdot 10^{-5}$ .

2. We consider Cu atoms forming a lattice whose filled shells are approximately the same as in free Cu atoms and the wave function of the 4 s electrons overlaps strongly with that of the 3 d shell (KRUTTER 1935).

Since the maximum energy of positrons emitted from the radioactive  $\text{Cu}^{64}$  atoms is equal to 0.66 MeV, they can penetrate deeply into the cores of the atoms and we cannot exclude a priori the possibility of annihilation also in the inner shells.

In the Fermi-gas model the integral (14) becomes for the conduction electrons:

$$J_c \equiv \int_{\frac{2|K-1|}{K}}^{\infty} |C(P)|^2 d^3P = \frac{4\pi}{3} P'^3 \left[ 1 - \left( \frac{2}{P'} \frac{|K-1|}{K} \right)^3 \right]$$

Expressing  $K$  in terms of the wave length  $\lambda$  in X-units

$$\lambda = \frac{\lambda_0}{K} \quad (16)$$

where  $\lambda_0 = 24.27 \text{ } \mu$  is the Compton wave length of the electron. We have

$$J_c = \frac{4\pi}{3} P'^3 \{ 1 - (15.5 |\Delta\lambda|)^3 \}, \quad \Delta\lambda \equiv \lambda - \lambda_0 \quad (17)$$

For the  $\text{Cu}^+$  ions we consider the HARTREE diagram for the charge density (HARTREE 1933, p. 300)<sup>2)</sup>. This function has three peaks corresponding to the three shells:  $K$  (2 electrons),  $L$  (8 electrons) and  $M$  (18 electrons) at distances  $r_{n \text{ max}}$  from the nucleus:

$$\begin{aligned} r_{1 \text{ max}} &= 0.035 \cdot 10^{-8} \text{ cm} \\ r_{2 \text{ max}} &= 0.069 \cdot 10^{-8} \text{ cm} \\ r_{3 \text{ max}} &= 0.32 \cdot 10^{-8} \text{ cm} \end{aligned} \quad (18)$$

<sup>2)</sup> In the calculations leading to fig. 2 the exchange effect has not been taken into account, but the corrections due to exchange are in our case negligible.



For simplicity we replace the two first peaks by one placed at

$$(2 r_{1 \max} + 8 r_{2 \max})/10 = 0,062 \cdot 10^{-8} \text{ cm} \approx r_{2 \max} \quad (18')$$

We replace now the wave function for each shell by the normalized hydrogen-like ground state wave function  $\psi_n$  with parameters so chosen that  $r^2 |\psi_n|^2$  has the maximum at  $r_{n \max}$ :

$$\psi_n = a_n^{3/2} \pi^{-1/2} e^{-a_n r} \quad (19)$$

where

$$a_n = 1/r_{n \max}$$

Then  $r^2 |\psi_n|^2$  approximates roughly the charge density function for the corresponding shell. Since the regions where the corresponding density functions are appreciably different from zero overlap only to a small degree we shall treat the annihilation in different shells as separate phenomena. Inserting (19) into (10) we have

$$C_n(\mathbf{P}) = -\frac{4}{\pi \sqrt{2}} \frac{(a_n \hbar c)^{5/2}}{[(a_n \hbar c)^2 + P^2]^2}$$

and from (11<sup>0</sup>)

$$C_n(\mathbf{P}) = -\frac{4}{\pi \sqrt{2}} \frac{A_n^{5/2}}{(P^2 + A_n^2)^2} \quad (20)$$

where

$$A_n = \frac{a_n \hbar c}{\mu} = a_n \lambda_0 = 3,86 \cdot 10^{-11} a_n \quad (21)$$

( $\lambda_0$  is  $(1/2\pi)$ . Compton wave length for the electron).

From (18), (18') and (21) we get

$$A_2 = 0,062 \quad A_3 = 0,012 \quad (22)$$

It is easily seen that

$$A_n = \sqrt{P^2} = \sqrt{\bar{\beta}_n^2}$$

where  $\sqrt{\bar{\beta}_n^2}$  are the mean velocities of the electrons in different shells and they have the same orders of magnitude as those given by DU MOND (1946, p. 1237).

From (14) and (20) we get the annihilation rate in the  $n$  shell putting in  $\{ \}, K=1$  because of smallness of  $A_n$ , ( $\eta$  denotes the relative probability of annihilation in the  $n$  shell)

$$dR_n = c N N_+ r_0^2 d\Omega \frac{16}{\pi} \eta_n \int_{2|K-1|/K}^{\infty} \frac{A_n^5 P^2 dP}{(P^2 + A_n^2)^4} \quad (23)$$

Evaluating the integral and expressing  $K$  in terms of the wave lengths  $\lambda$  we have

$$dR_n = c N N_+ r_0^2 d\Omega \frac{16}{\pi} \eta_n J_n \quad (24)$$

where

$$J_n = \frac{1}{16} \left( \frac{\pi}{2} - \operatorname{arctg} \frac{2|\Delta\lambda|}{\lambda_0 A_n} \right) + \frac{\Delta\lambda}{\lambda_0 A_n} Y \left( \frac{1}{3} Y^2 - \frac{1}{12} Y - \frac{1}{18} \right) \quad (24')$$

$$Y = \frac{(\lambda_0 A_n)^2}{(2\Delta\lambda)^2 + (\lambda_0 A_n)^2}$$

In Fig. 2  $dR_n$  are drawn as a function of  $\Delta\lambda$ . Since the  $dR_n$  are practically symmetrical only the left parts of them are drawn. In this figure also the experimental curve of DU MOND and al. (1949) corresponding to the GAUSSIAN curve  $C \exp(-x^2/2\sigma)$  for  $\sigma = 0.096$  X. U.

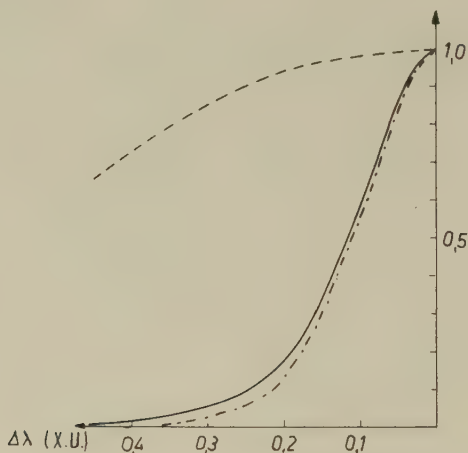


Fig. 2

- exp. curve of du Mond
- — — theor. curve for *K* and *L* shells
- — — theor. curve for *M* shell

All curves are normalized so, that their ordinates for  $\Delta\lambda = 0$  are equal to 1.

The curve (17) for the conduction electrons is not drawn because it has an extremely small breadth in comparison with the  $dR_m$ -curves. From Fig. 3 and from (17) one can easily state that the main contribution to annihilation comes from the 18 electrons of the *M* shell, the contribution of the conduction electrons is negligible and the contribution of the *K* and *L* shells does not exceed 5%. The total annihilation rate is therefore

$$dR = 0.05 dR_2 + 0.95 dR_3$$

(For the electrons of velocity zero we get, after integration over angles, the annihilation rate

$$R = 2 \pi c N N_+ r_0^2$$

in agreement with Heitler's formula (1954, § 27 (11)<sup>3</sup>).

In the second model we consider the 4 s electrons as belonging to the *M* shell. From the preceding calculations we can state that according to this model the contribution of the *M* shell together with the 4 s electrons amount to 95% and the contribution from the *K* and *L* shells to 5%.

### § 5. Annihilation in gold

The measurements in gold were made by DE BENEDETTI and al. (1950). In their experiment a radioactive copper source emitted positrons with maximum energy 0.66 MeV which entered into the sample of gold and annihilated with the electrons inside this sample. DE BENEDETTI and al. observed the angular correlations of the photons of annihilation and from their experiments they deduced that the mean momentum  $\bar{p}_{Au}$  of the center of mass of annihilating particles was 1.2/137 mc or in our notation

$$\bar{p}_{m.c.} = \frac{1.2}{137} = 0.088 \quad (25)$$

In order to apply our method to this case we must make some introductory remarks.

1. If we compare the GAUSSIAN curve  $f(x) = C \exp(-x^2/2\sigma^2)$  with the curve (24) with the same height and the same half breadth we may easily deduce the relation between  $\sigma$  and  $A$ :

$$A = 0.13 \sigma \quad (26)$$

2. For a GAUSSIAN curve  $f(x)$  the mean deviation from  $\lambda_0$  is equal to  $\sigma$

$$\overline{\Delta\lambda} = \sqrt{(\overline{\lambda - \lambda_0})^2} = \sigma \quad (27)$$

3. The deviation  $\Delta\lambda$  of  $\lambda$  from 24, 27 X. U. is the result of the Doppler effect since the two annihilating photons are emitted from the moving center of mass with the mean velocity  $v$ :

$$\frac{v}{c} = \frac{|\overline{\Delta\lambda}|}{\lambda_0}$$

To get the momentum of the centre of mass we multiply this formula by the mass of the mass centre and get, remembering (27)

$$\bar{P}_{m.c.} = 2 \frac{6}{\lambda_0} = 0.082 \sigma$$

<sup>3</sup>) Our result differs from HEITLER's formule by the factor  $2 N_+$  since HEITLER defines  $R = 2 N \Phi v_+$  and in our paper  $R = 2 N N_+ \Phi \cdot$  relative velocity of electron and positron.

(For Cu,  $P_{m.c} = 1.1/137$ , (in agreement with DE BENEDETTI). For Au we have from (25) and (28)

$$\sigma_{exp} = 0.107 \text{ X. U.}$$

Since for Au from experiment only  $P_{m.c}$  is given and not the whole shape of the annihilation line we shall approximate the experimental and theoretical curves by GAUSSIAN curves.

We regard for gold the same two models as for copper. The maximum energy of conduction electrons in the Fermi-gas model is according to SEITZ (1940) equal to 5.04 eV and therefore the line breadth is even smaller than in the case of copper. In the second model we assume in analogy to the case of copper that the wave function of the 6 s electrons overlaps strongly with that of the 5d electrons.

The theoretical  $r_{n \max}$  for  $n = 4, 5$  were computed from the paper of Henry on the Hartree model for  $\text{Au}^+$  (HENRY 1954).

$$r_{4 \max} = 0.22 \cdot 10^{-8} \text{ cm}$$

$$r_{5 \max} = 0.5 \cdot 10^{-8} \text{ cm}$$

From (27) and (21) we have at once

$$A_4 = 0.0175 \quad \sigma_4 = 0.135$$

$$A_5 = 0.0078 \quad \sigma_5 = 0.059$$

The corresponding GAUSSIAN curves are drawn in Fig. 3 (left parts). The normalization of the curves is the same as in Fig. 2.

In the first model we may interpret the dotted curve which agrees best with the experimental one as the curve for the contribution of the 50–60% of annihilations in the O-shell and a contribution of 40–50% of annihilation in the N-shell. The contribution of conduction electrons is negligible. In the second model we may interpret 50–60% of the annihilations as coming from the 18 electrons of the O-shell together with the one 6 s electron.

DE BENEDETTI and al. used the intermediate model in which the 6 s electrons have the same wave functions as the 5 d electrons when they are inside the ion and are free when they are outside it. The positrons are assumed to be stopped and annihilated outside the ions. DE BENEDETTI and al. obtained 3/4 of the effect from this model, which is in qualitative agreement with the curve for conduction electrons in fig. 3. But fig. 3 indicates that almost the whole contribution to annihilation stems from the electrons inside the ions.

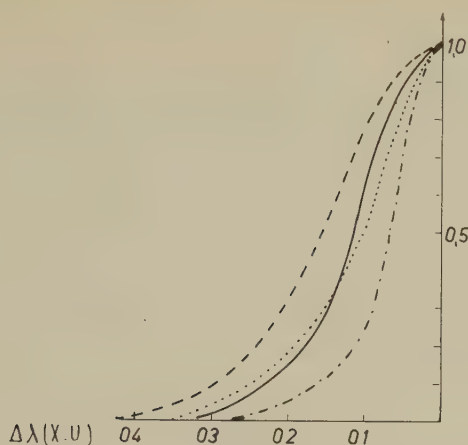


Fig. 3

- curve from exp. datum  
 - - - - - theor. curve for *N* shell  
 - - - - - theor. curve for *O* shell  
 . . . . . resultant theor. curve

## § 6. Results and discussion

From the comparison of the theoretical curves for different shells and the experimental data for Cu and Au discussed in the preceding sections it follows for the Fermi-gas model that the contribution from conduction electrons to the annihilation line breadth is negligible and the greatest contribution (95% for Cu, and 50–60% for Au) stems from the annihilation in the outmost closed shell of the atom. But some of the positrons (5% in Cu, 40–50% in Au) are stopped and annihilate before reaching thermal velocities.

In the second model the contribution of the outside shell together with the last incomplete shell (one electron) is for Cu about 95%, for Au 50–60%. The remaining contributions are due to the next inner shell. We compare now our results with the estimations of DU MOND and al. We see from (20) and (22) that we obtain for the *M* shell the theoretical value  $\sigma_3 = 0.094$  X. U., whereas from the half breadth value of 0.21 X. U. given by DU MOND it follows for the corresponding GAUSSIAN curve  $\sigma = 0.09$  X. U. These two values agree fairly well. We now repeat the method of estimation of DU MOND and al. for the conduction electrons in Au. The mean energy of these electrons is 3.5 eV. The mean velocity of the mass centre of annihilating particles is 0.0012 *c* and according to (27) and (27') we get  $\sigma = 0.008$  X. U. This value is much greater than the exact value following from (17') but is ten times smaller than the value



estimated (in this case not quite correctly) by DU MOND and al., as coinciding nearly with the experimental value  $\sigma = 0.096 \text{ X. U.}$

If our simple picture of the mechanism of annihilation is true, the annihilation line should be accompanied for copper by the  $M$  spectrum of characteristic X-rays and for gold by the characteristic  $N$ -spectrum (independently of the assumption of the first or the second model).

I wish to express my thanks to Professor W. HEITLER for his kind interest in this work and helpful discussions. I also thank Dr. Z. NARAY and Dr. L. O'RAIFEARTAIGH for interesting discussions, the Schweizerischer Nationalfonds for the grant enabling me to stay in Zurich and the Polish Ministry of Higher Education for the granting of leave of absence.

### References

- DE BENEDETTI, S., COWAN, C. E., KONNECKER, W. R., and PRIMAKOFF, H., *Phys. Rev.* **77**, 205 (1950).  
HARTREE, D. R., *Proc. Roy. Soc.* **141**, 282 (1933).  
HENRY, W. G., *Proc. Phys. Soc. A* **67**, 789 (1954).  
HEITLER, W., *Quantum Theory of Radiation*, Oxford 1954.  
KRUTTER, H. M., *Phys. Rev.* **48**, 664 (1935).  
DU MOND, J. W. M., LIND, D. A., and WATSON, B. B., *Phys. Rev.* **75**, 1226 (1949).  
SEITZ, *The Modern Theory of Metals*.

# Groupe mésonique et conservation de la parité<sup>a)</sup>

par **A. Pétermann**

CERN, Division théorique, Genève

et **Henri Ruegg**

(Institut de Physique de l'Université, Genève)

*Summary.* A principle of invariance under a continuous local group of transformations, the mesic group, is being investigated. This principle has the following consequences:

1. For the pseudoscalar YUKAWA interaction of two Fermions with the pseudoscalar  $\pi$ -meson it entails  $PC$  invariance.

2. If the Fermions have equal bare masses with respect to electromagnetic interaction (a hypothesis which is plausible for the nucleons), the principle imposes, for the  $ps$  interaction with  $\pi$ , the conservation of isotopic spin and separate  $P$  and  $C$  invariance.

3. For the FERMI interactions of the pairs  $(pn)$ ,  $(\nu\mu^-)$ ,  $(\nu e^-)$ , etc. it involves  $V$  and  $A$  coupling, with non conservation of parity.

Our arguments leading to this principle are based on a generalization of the demonstration of the Dyson-Foldy equivalence theorem as given by STUECKELBERG and one of us.

## 1. Introduction

Maintenant qu'il est admis que la parité n'est pas conservée dans certains processus élémentaires, il s'agit de comprendre ce qui distingue, mise à part la grandeur de la constante de couplage, les interactions faibles de celles parmi les interactions fortes qui conservent la parité. Il serait utile, en outre, de connaître le nombre de constantes arbitraires admises par chaque type d'interaction. Ceci revient à étudier les propriétés de symétrie de la Lagrangienne qui détermine ces différents processus.

De nombreuses tentatives ont été faites pour expliquer, par un principe d'invariance *ad hoc*, certains des problèmes que nous venons d'évoquer. Leurs avantages et inconvénients ont déjà souvent été discutés dans la littérature. Nous proposons, dans ce travail, un principe d'invariance par rapport à un groupe de transformations continues, qui possède les avantages suivants:

1<sup>o</sup> Il s'applique à certaines interactions fortes *et* faibles où intervient le méson  $\pi$ , y compris à la désintégration de  $\pi$  par couplage de FERMI ( $\pi^+ \rightarrow p + \bar{n} \rightarrow e^+ + \nu$ ).

2<sup>o</sup> Il laisse invariante la Lagrangienne totale, même lorsque la masse des particules est non nulle. Le principal défaut de nombreux essais antérieurs était la non-invariance du terme d'inertie.

<sup>a)</sup> Recherche subventionnée par le Fonds National Suisse.

3° Pour l'interaction pseudoscalaire de YUKAWA de 2 Fermions avec le méson  $\pi$  pseudoscalaire, il entraîne l'invariance  $PC$ .

Si la différence de masse des 2 Fermions est due à l'interaction électromagnétique — hypothèse qui est très plausible dans le cas des nucléons —, le principe d'invariance a pour conséquence la conservation du spin isotopique et de la parité.

4° Pour les interactions de FERMI il force la non conservation de  $P$  et interdit les couplages scalaire, pseudoscalaire et tensoriel.

5° Sous l'hypothèse de la «symétrie restreinte», il force la conservation de la parité dans les interactions de YUKAWA du méson  $\pi$  avec les particules  $\Lambda$  et  $\Sigma$ . Les résultats préliminaires ont été donnés par <sup>1)</sup>.

## 2. Interaction entre les nucléons et les mésons $\pi$ avec conservation de parité

Dans ce paragraphe, nous allons expliquer notre méthode dans un cas particulier, et, incidemment, prouver un théorème nouveau. DYSON-FOLDY<sup>2)</sup> et d'autres avaient montré l'équivalence, en 1<sup>re</sup> approximation, du couplage pseudoscalaire ( $PS$ ) et pseudovectoriel ( $PV$ ). STUECKELBERG et un de nous<sup>3)</sup> ont prouvé, pour l'interaction avec le méson neutre  $\Pi^0$ , que la transformation de DYSON-FOLDY est un cas particulier d'un groupe qu'ils appellent groupe de transformation mésonique. Nous allons prouver l'existence d'un groupe plus général, qui laisse invariante la Lagrangienne d'interaction des nucléons avec les trois mésons  $\pi$  et le champ électromagnétique. Plus précisément, il existe une fonction  $L(\psi(l), \Phi^i(l))$ , où  $l = l(x)$  est un paramètre local, et une transformation  $\psi \rightarrow \psi'$ ,  $\Phi \rightarrow \Phi'$  qui laisse  $L$  invariante, de telle manière que pour une certaine valeur de  $l$ ,  $L$  représente l'interaction  $PS$ , et pour une autre, l'interaction  $PV$  (plus des termes non linéaires).

Nous posons pour  $L$ :

$$L = L_0 + L_s + L_{ps} + L_{pv} + L_v + L_e + L_\varphi \quad (1)$$

avec

$$L_0 = -\frac{1}{2} [\psi \gamma_\mu \partial_\mu \psi - \partial_\mu \bar{\psi} \gamma_\mu \psi]$$

$$L_s = h \bar{\psi} \Phi_0(l) \psi$$

$$L_{ps} = i g \bar{\psi} \gamma_5 \tau \Phi_5(l) \psi$$

$$L_{pv} = i f \bar{\psi} \gamma_5 \gamma_\mu \tau \Phi_{\mu 5}(l) \psi$$

$$L_v = i \Phi \bar{\psi} \gamma_\mu \tau \Phi_\mu(l) \psi$$

$$L_e = i e \bar{\psi} \gamma_\mu A_\mu \frac{1 + \tau_3}{2} \psi^b)$$

b)  $\gamma_\mu = \gamma^{*\sim} = \gamma_\mu$ ;  $\gamma_5^+ = \gamma_5$ ;  $\gamma_i^* = +\gamma_i$ ;  $\gamma_4^* = -\gamma_4$ ;  $\gamma_5^* = -\gamma_5$   
 $\gamma_\mu \gamma_\nu + \gamma_\nu \gamma_\mu = 2 \delta_{\mu\nu}$ ;  $\alpha_4 = i t$ ;  $\psi = \begin{pmatrix} \psi_p \\ \psi_n \end{pmatrix}$

et pour la transformation infinitésimale de  $\psi(l)$ :

$$\delta\psi = i f \gamma_5 \boldsymbol{\tau} \boldsymbol{\varphi}_5 \psi \delta l; \quad \delta\bar{\psi} = i f \bar{\psi} \gamma_5 \boldsymbol{\tau} \boldsymbol{\varphi}_5 \delta l \quad (2)$$

alors qu'il reste à déterminer les lois de transformation des fonctions  $\Phi^i(l)$  de manière à assurer l'invariance de  $L$ . Ces fonctions  $\Phi_0(l)$ ,  $\Phi_5(l)$ ,  $\Phi_{\mu 5}(l)$ ,  $\Phi_\mu(l)$  sont respectivement de caractère scalaire, pseudoscalaire, pseudovectoriel et vectoriel dans l'espace ordinaire, scalaire et (pseudo) vectoriel dans l'espace isotopique.  $\boldsymbol{\varphi}_5$  représente le méson  $\pi$ , avec  $\partial\boldsymbol{\varphi}/\partial l = 0$ ,  $L_\varphi$  la partie libre et l'interaction électromagnétique du méson  $\pi$ , qui ne varie pas dans la transformation.

Pour calculer la transformation de  $L$ , les relations suivantes sont utiles:

$$(\boldsymbol{\tau} \boldsymbol{\varphi}) (\boldsymbol{\tau} \boldsymbol{\Phi}) = \boldsymbol{\varphi} \boldsymbol{\Phi} + i \boldsymbol{\tau} (\boldsymbol{\varphi} \times \boldsymbol{\Phi})$$

$$(\boldsymbol{\tau} \boldsymbol{\Phi}) (\boldsymbol{\tau} \boldsymbol{\varphi}) = \boldsymbol{\varphi} \boldsymbol{\Phi} - i \boldsymbol{\tau} (\boldsymbol{\varphi} \times \boldsymbol{\Phi})$$

$$(\boldsymbol{\tau} \boldsymbol{\varphi}) \tau_3 = \varphi_3 + i (\boldsymbol{\tau} \times \boldsymbol{\varphi})_3$$

$$\tau_3 (\boldsymbol{\tau} \boldsymbol{\varphi}) = \varphi_3 - i (\boldsymbol{\tau} \times \boldsymbol{\varphi})_3$$

On obtient alors, avec  $\delta\Phi = \partial\Phi/\partial l \delta l$  et  $\partial A_\mu/\partial l = 0$ .

$$\left. \begin{aligned} \delta L_0 &= i f \bar{\psi} \gamma_5 \gamma_\mu \boldsymbol{\tau} \partial_\mu (\boldsymbol{\varphi}_5 \delta l) \psi \\ \delta L_{pv} &= i f \bar{\psi} \gamma_5 \gamma_\mu \boldsymbol{\tau} \delta \boldsymbol{\Phi}_{\mu 5} \psi - 2 i f^2 \bar{\psi} \gamma_\mu \boldsymbol{\tau} (\boldsymbol{\varphi}_5 \times \boldsymbol{\Phi}_{\mu 5}) \psi \delta l \\ \delta L_v &= -2 i f \bar{\psi} \gamma_5 \gamma_\mu \boldsymbol{\tau} (\boldsymbol{\varphi}_5 \times \boldsymbol{\Phi}_\mu) \psi \delta l + i \bar{\psi} \gamma_\mu \boldsymbol{\tau} \delta \boldsymbol{\Phi}_\mu \psi \\ \delta L_e &= -i e f \bar{\psi} \gamma_5 \gamma_\mu A_\mu (\boldsymbol{\tau} \times \boldsymbol{\varphi}_5)_3 \psi \delta l \end{aligned} \right\} \quad (3a)$$

$$\left. \begin{aligned} \delta L_s &= 2 i f h \bar{\psi} \gamma_5 \Phi_0 \boldsymbol{\tau} \boldsymbol{\varphi}_5 \psi \delta l + h \bar{\psi} \delta \Phi_0 \psi \\ \delta L_{ps} &= i g \bar{\psi} \gamma_5 \boldsymbol{\tau} \delta \boldsymbol{\Phi}_5 \psi - 2 g f \bar{\psi} \boldsymbol{\varphi}_5 \boldsymbol{\Phi}_5 \psi \delta l \\ \delta L_\varphi &= 0 \end{aligned} \right\} \quad (3b)$$

Comme  $\bar{\psi} \gamma_5 \psi$ ,  $\psi \gamma_5 \gamma_\mu \psi$ , etc. sont linéairement indépendants,  $\delta L = 0$  conduit aux équations suivantes:

$$\delta \boldsymbol{\Phi}_{\mu 5} = -\partial_\mu (\boldsymbol{\varphi}_5 \delta l) - e A_\mu \boldsymbol{\Theta}_5 \delta l + 2 \boldsymbol{\varphi}_5 \times \boldsymbol{\Phi}_\mu \delta l \quad (4a)$$

$$\delta \boldsymbol{\Phi}_\mu = 2 f^2 (\boldsymbol{\varphi}_5 \times \boldsymbol{\Phi}_{\mu 5}) \delta l \quad (4b)$$

$$g \delta \boldsymbol{\Phi}_5 = -2 f h \Phi_0 \boldsymbol{\varphi} \delta l \quad (5a)$$

$$h \delta \Phi_0 = 2 g f \boldsymbol{\Phi}_5 \boldsymbol{\varphi}_5 \delta l \quad (5b)$$

avec  $\Theta_1 = -\varphi_2$ ;  $\Theta_2 = \varphi_1$ ;  $\Theta_3 = 0$ .

L'équation (4b) montre que le terme inhabituel  $L_v$  a dû être introduit dans (1) pour des raisons de covariance, pour compenser le terme  $\varphi_5 \times \Phi_{\mu 5}$  provenant de  $L_{pv}$ . L'autre possibilité,  $\varphi_5 \times \Phi_{\mu 5} = 0$  est incompatible avec (4a).

La solution la plus générale des équations (4) et (5) est<sup>e)</sup>:

$$\left. \begin{aligned} \Phi_{\mu 5} &= -\partial_\mu (\varphi_5 l) - e A_\mu \Theta_5 l - 2 \varphi_\mu \times \varphi_5 l \\ &\quad - \frac{1}{2f} \frac{\alpha_\mu \times \varphi_5}{\bar{\varphi}} \sin(2f \bar{\varphi} l) + \frac{1}{2f} \frac{\beta_\mu \times \varphi_5}{\bar{\varphi}} \cos(2f \bar{\varphi} l) + \varphi_{\mu 5} \\ \Phi_\mu &= \frac{1}{2\bar{\varphi}^2} [(\partial_\mu \varphi_5 + e A_\mu \Theta_5) \times \varphi_5] + \frac{\alpha_\mu}{2} \cos(2f \bar{\varphi} l) + \\ &\quad + \frac{\beta_\mu}{2} \sin(2f \bar{\varphi} l) + \eta_{\mu 5} \varphi_5 \end{aligned} \right\} \quad (6)$$

$$\left. \begin{aligned} h \Phi_0 &= a_0 \cos(2f \bar{\varphi} l) + b_0 \sin(2f \bar{\varphi} l) \\ g \Phi_5 &= [-a_0 \sin(2f \bar{\varphi} l) + b_0 \cos(2f \bar{\varphi} l)] \frac{\varphi_5}{\bar{\varphi}} + g \varepsilon_5 \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

avec  $\bar{\varphi} = \sqrt{\varphi_5^2}$ ;  $2 \varphi_\mu = \bar{\varphi}^{-2} [(\partial_\mu \varphi_5 + e A_\mu \Theta_5) \times \varphi_5]$ ;  $a_0, b_0, \varepsilon_5, \alpha_\mu, \beta_\mu, \varphi_{\mu 5}, \eta_{\mu 5}$  sont des constantes d'intégration indépendantes de  $l$  telles que:

$$\varphi_5 \cdot \varepsilon_5 = 0; \quad \alpha_\mu \cdot \varphi_5 = 0; \quad \beta_\mu \cdot \varphi_5 = 0; \quad \varphi_{\mu 5} \times \varphi_5 = 0.$$

Avant de passer à l'interprétation physique de (6) et de (7), il faut remarquer que ces solutions, ainsi que les équations (3), (4), (5), ne sont rigoureuses que pour des champs classiques. Pour des champs quantifiés, on remarque que  $\Phi_{\mu 5}$  ne commute pas avec  $\varphi_5$ , parce que  $[\partial_t \varphi_i, \varphi_i] \neq 0$ . Pour donner un sens à (6), il faut symétriser toutes les expressions ambiguës, par exemple  $\partial_\mu \varphi_i \cdot \varphi_i \rightarrow 1/2 (\partial_\mu \cdot \varphi_i \cdot \varphi_i + \varphi_i \partial_\mu \varphi_i)$ . Ceci est nécessité par le fait que lorsqu'on calcule (3), on obtient précisément des expressions de cette forme. Par exemple:

$$\begin{aligned} \delta L_{pv} &= i f \bar{\psi} (i f \gamma_5 \tau \varphi_5 \delta l) \gamma_5 \gamma_\mu \tau \Phi_{\mu 5} \psi \\ &\quad + i f \bar{\psi} \gamma_5 \gamma_\mu \tau \Phi_{\mu 5} (i f \gamma_5 \tau \varphi_5 \delta l) \psi + i f \bar{\psi} \gamma_5 \gamma_\mu \tau \delta \Phi_{\mu 5} \psi \end{aligned}$$

Les problèmes soulevés par le passage du cas classique au cas quantique sont en principe les mêmes que ceux déjà traités dans <sup>3)</sup>.

Revenons à la discussion de (6) et de (7). Les fonctions  $\Phi(l)$ , introduites dans  $L$ , donnent une Lagrangienne qui peut représenter une situation physique très générale: interaction  $PS, PV$  des nucléons avec des champs,  $S, PS, PV, V$ . Nous allons, à titre d'exemple, particulariser les

<sup>e)</sup> Remarquons que l'invariance par rapport à (2) et (4) assure automatiquement l'invariance de jauge électromagnétique de  $L_{pv}$  et  $L_v$ .



constantes d'intégration, pour obtenir les deux cas les plus intéressants, soit, pour une valeur déterminée de  $l$ , un

- a) couplage  $PS$  pur avec un méson  $PS$ ;
- b) couplage  $PV$  pur avec un méson  $PS$ .

Dans les deux cas,  $L_s$  devra représenter le terme d'inertie des nucléons. Nous aurons donc

$$\left. \begin{aligned} \text{a) } L'_S &= -m \bar{\psi} \psi & L'_{PS} &= i g \bar{\psi} \gamma_5 \boldsymbol{\tau} \boldsymbol{\varphi}_5 \psi & L'_{PV} &= L'_V = 0 \\ \text{b) } L'_S &= -m \bar{\psi} \psi & L'_{PV} &= i f \bar{\psi} \gamma_5 \gamma_\mu \boldsymbol{\tau} (\partial_\mu \boldsymbol{\varphi}_5 + e A_\mu \boldsymbol{\Theta}_5) \psi \\ & & L'_{PS} &= L'_V = 0 \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

Le ' indique une valeur particulière de  $l$

Le cas a) est réalisé pour  $l = 0$  avec

$$a_0 = -m; \quad b_0 = g \bar{\varphi}; \quad \boldsymbol{\varepsilon}_5 = 0; \quad \boldsymbol{\alpha}_\mu = -2 \boldsymbol{\varphi}_\mu; \quad \boldsymbol{\beta}_\mu = 0; \quad \boldsymbol{\varphi}_{\mu 5} = 0 = \eta_{\mu 5} \quad (9)$$

Le cas b) est réalisé pour ( $l = -1$ ) avec

$$\left. \begin{aligned} a_0 &= -m \cos(2f \bar{\varphi}); \quad b_0 = m \sin(2f \bar{\varphi}); \quad \boldsymbol{\varepsilon}_5 = 0 \\ \boldsymbol{\alpha}_\mu &= -[2 \cos(2f \bar{\varphi}) + 4f \bar{\varphi} \sin(2f \bar{\varphi})] \boldsymbol{\varphi}_\mu \\ \boldsymbol{\beta}_\mu &= [2 \sin(2f \bar{\varphi}) - 4f \bar{\varphi} \cos(2f \bar{\varphi})] \boldsymbol{\varphi}_\mu \end{aligned} \right\} \quad (10)$$

Dans le cas a) on obtient:

$$\left. \begin{aligned} L_S &= \bar{\psi} [-m \cos(2f \bar{\varphi} l) + g \bar{\varphi} \sin(2f \bar{\varphi} l)] \psi \\ L_{PS} &= i g \bar{\psi} \gamma_5 \boldsymbol{\tau} \boldsymbol{\varphi}_5 \left[ \cos(2f \bar{\varphi} l) + \frac{m}{g \bar{\varphi}} \sin(2f \bar{\varphi} l) \right] \psi \\ L_{PV} &= i f \bar{\psi} \gamma_5 \gamma_\mu \boldsymbol{\tau} \left\{ -\partial_\mu (\boldsymbol{\varphi}_5 l) - e A_\mu \boldsymbol{\Theta}_5 l - \right. \\ &\quad \left. - \frac{1}{\bar{\varphi}^2} [(\partial_\mu \boldsymbol{\varphi}_5 + e A_\mu \boldsymbol{\Theta}_5) \times \boldsymbol{\varphi}_5] \times \boldsymbol{\varphi}_5 \left( l - \frac{1}{2f \bar{\varphi}} \sin(2f \bar{\varphi} l) \right) \right\} \psi \\ L_V &= i \bar{\psi} \gamma_\mu \boldsymbol{\tau} \frac{1}{2 \bar{\varphi}^2} [(\partial_\mu \boldsymbol{\varphi}_5 + e A_\mu \boldsymbol{\Theta}_5) \\ &\quad \times \boldsymbol{\varphi}_5] (1 - \cos(2f \bar{\varphi} l)) \psi \end{aligned} \right\} \quad (11)$$

Résumons: Les expressions (11), introduites dans (1), donnent une fonction  $L$  invariante par rapport à la transformation (2). Pour différentes valeurs de  $l$ ,  $L$  peut prendre, en fonction de  $\psi(l)$ , des formes différentes, mais équivalentes, tous les champs  $\psi(l)$  ayant la même Lagrangienne libre. En particulier, pour  $l = 0$ , le terme d'interaction avec le champ  $\varphi$  (méson  $\pi$ ) ne comprend qu'une partie pseudoscalaire  $PS$ , et pour

$l = 1/2 f \bar{\psi} \arctg(-g \bar{\psi}/m)$  une partie pseudovectorielle, plus des termes non linéaires, qu'il serait facile de déterminer à partir de (11). Il suit de ces considérations, que la matrice  $S$ , qui est la seule grandeur physique donnée par l'expérience, est indépendante de  $l$ , donc que les couplages  $PS$  et  $PV$  sont équivalents en 1<sup>re</sup> approximation.

Nous avons donc trouvé:

$$L(\psi(l')) = L(\psi(l''))$$

$$l = l' = 0$$

$$L(\psi(l')) = L_0(\psi(l')) - m \bar{\psi}(l') \bar{\psi}(l') + L_e(\psi(l')) + L_\varphi + i g \bar{\psi} \gamma_5 \tau \varphi_5 \psi(l')$$

$$l = l'' = \frac{1}{2 f \bar{\varphi}} \arctg\left(\frac{-g \bar{\varphi}}{m}\right)$$

$$L'' = L_0(\psi(l'')) - m \bar{\psi}(l'') \psi(l'') + L_e(\psi(l'')) + L_\varphi +$$

$$+ i f \frac{g}{2 f m} \bar{\psi}(l'') \gamma_5 \gamma_\mu \tau (\partial_\mu \varphi_5 + e A_\mu \Theta_5) \psi(l'') + i \bar{\psi} \gamma_\mu \frac{g^2}{4 m^2} \tau (\partial_\mu \varphi_5 + e A_\mu \Theta_5) \times \varphi_5 \psi + \text{termes non linéaires en } \varphi.$$

On obtient l'équivalence en posant  $g = 2 fm$ . Pour  $l = 0$ , la théorie est renormalisable, elle l'est donc pour tout  $l$ , ce qui explique l'apparition des termes non linéaires, les infinités provenant de ces termes compensant celles du couplage  $PV$  pur.

Il serait facile d'établir des formules analogues dans le cas b), mais nous nous contenterons de remarquer que pour  $l = -1$   $L'_{ps} = L'_v = 0$  et l'on obtient un couplage  $PV$  pur, alors que pour  $l = 0$   $L''_{pv} = 0$ , et l'on obtient un couplage  $PS$  plus des termes non linéaires. L'équivalence, en 1<sup>re</sup> approximation, de  $PS$  et de  $PV$  exige de nouveau  $g = 2 fm$ .

L'avantage de cette démonstration du théorème d'équivalence réside dans la généralité des formules (6) et (7), qui permettent d'étudier d'autres types d'interaction, notamment avec des particules de spin 1.

### 3. Forme la plus générale de l'interaction de Yukawa

Nous arrivons maintenant à l'objectif principal de notre étude. Dans le paragraphe précédent, nous avons vu que l'invariance de la Lagrangienne totale par rapport à une transformation du type (2) (c'est-à-dire une transformation continue comprenant un facteur  $\gamma_5$ ) nécessite l'introduction des fonctions  $\Phi(l)$ . Nous avons montré la signification physique de ces fonctions dans plusieurs exemples. Cependant, nous nous sommes limités aux interactions où la parité et le spin isotopique sont conservés. La question que nous nous posons maintenant est la suivante:

existe-t-il des fonctions  $\Phi(l)$  plus générales, telles qu'il soit possible d'introduire dans la Lagrangienne des termes qui ne conservent pas la parité et le spin isotopique, sans détruire l'invariance? La réponse est affirmative, avec certaines restrictions, si nous nous limitons à la transformation (2). Par contre, si nous postulons l'invariance par rapport à la transformation suivante:

$$\delta\psi = i(\xi + \eta\gamma_5) \tau \varphi_5 \psi \delta l \text{ avec } \xi = \pm \eta \text{ (nombres)} \quad (12)$$

le choix des fonctions  $\Phi(l)$  est limité et la Lagrangienne est soumise aux restrictions citées dans l'introduction, c'est-à-dire:

1. Invariance PC de l'interaction pseudoscalaire de YUKAWA des deux Fermions avec le méson  $\pi$  pseudoscalaire.

2. Conservation de P et C séparément, et CI (indépendance de charge) de l'interaction, si les masses nues des deux Fermions sont égales.

Le but de ce paragraphe est donc de trouver la fonction  $L(l)$  la plus générale qui soit invariante sous la transformation (12). Nous ferons cependant les restrictions suivantes:

a)  $L(l=0)$  décrira une interaction purement pseudoscalaire (théorie renormalisable), donc  $L_{pv}(0) = L_v(0) = 0$ .

b) Les fonctions  $\Phi(l)$  seront des fonctions des trois composantes (dans l'espace isotopique) du champ  $\varphi_5$  du méson  $\pi$ .

La transformation (12), de même que (2), couple les termes  $L_s$  et  $L_{ps}$  d'une part, et les termes possédant un facteur  $\gamma_\mu$  d'autre part ( $L_0 + L_{pv} + L_v + L_e$ ). Etudions d'abord l'invariance de  $L_s + L_{ps}$ .

Par  $L_s$  nous entendons le terme de masse des deux Fermions. Si les masses sont quelconques, nous aurons:

$$L_s = m_1 \Phi_0(l) \bar{\psi}_1 \psi_1 + m_2 \Phi_0(l) \bar{\psi}_2 \psi_2 \quad (13')$$

L'interaction de YUKAWA pseudoscalaire la plus générale est:

$$L_{ps} = \bar{\psi}_1 (A^* + B^* \gamma_5) \varphi_5^* \psi_2 + h.c. + \bar{\psi}_1 (C + i D \gamma_5) \varphi_{3,5} \psi_1 + \bar{\psi}_2 (E + i F \gamma_5) \varphi_{3,5} \psi_2 \quad (13'')$$

où  $\psi_1$ , est un Fermion de charge positive,  $\psi_2$  neutre,  $\varphi_5 = 1/\sqrt{2}(\varphi_1 + i\varphi_2)$  crée  $\pi^+$ , annihile  $\pi^-$ ,  $\varphi_{3,5}$  crée ou annihile  $\pi^0$ .  $A, B$  sont complexes,  $C, D, E, F$  réels.  $L_{ps}$  comprend donc 8 coefficients réels.

Pour que  $L_s + L_{ps}$  soit invariant,  $A, B \dots$  doivent être des fonctions de  $l$  et de  $\varphi_i$ . Englobons les facteurs  $\varphi_5$  etc. dans ces fonctions, nous obtiendrons  $A_5(l, \varphi_i) \dots$ , etc. Pour les commodités du calcul, nous pouvons introduire de manière purement formelle un espace isotopique, en posant

d) L'indice 5 met en évidence le caractère pseudoscalaire, les indices 1, 2, 3 désignent les trois composantes de  $\varphi_5$  dans l'espace isotopique.

$\psi = \begin{pmatrix} \psi_1 \\ \psi_2 \end{pmatrix}$  et  $\varphi_5 = 1/\sqrt{2} (\varphi_1 + i \varphi_2)_5$ , etc. Les expressions équivalentes à (13) seront alors e):

$$L_s = m_1 \Phi_0(l) \bar{\psi} \frac{1+\tau_3}{2} \psi + m_2 \Phi_0(l) \bar{\psi} \frac{1-\tau_3}{2} \psi \quad (14')$$

$$L_{ps} = \bar{\psi} (\Phi'_5(l) + i \Phi''_5(l) \gamma_5) \tau \psi + \bar{\psi} (c_5(l) + i d_5(l) \gamma_5) \psi \quad (14'')$$

$\Phi'_5$  et  $\Phi''_5$  possédant chacun trois composantes réelles. Le passage de (13'') à (14'') s'obtient aisément en posant  $(\Phi'_1 + i \Phi'_2)_5 = A \varphi_5$ ;  $(\Phi''_1 + i \Phi''_2)_5 = -B \varphi_5$ ;  $c_5 + \Phi'_{3,5} = C \varphi_{3,5}$ ;  $c_5 - \Phi'_{3,5} = E \varphi_{3,5}$ ; etc. Remarquons que la conservation du spin isotopique exigerait  $\Phi'_5 = a \varphi_5$ ,  $\Phi''_5 = b \varphi_5$ ,  $c_5 = d_5 = 0$ . La conservation de la parité:  $\Phi'_5 = c_5 = 0$ . L'invariance PC:  $\tau \Phi'_5 = a (\tau \times \varphi_5)_3$ ,  $\Phi'' = b \varphi_5$ ,  $c_5 = 0$ ,  $d_5 = d \varphi_{3,5}$ .

En tenant compte des règles de commutation des opérateurs  $\tau$ , la variation de  $L_s + L_{ps}$  lors de la transformation (12) sera:

$$\begin{aligned} \delta L_s = & \frac{m_1+m_2}{2} \delta \Phi_0 \bar{\psi} \psi + \frac{m_1-m_2}{2} \delta \Phi_0 \bar{\psi} \tau_3 \psi \\ & + \xi (m_1 - m_2) \Phi_0 \delta \bar{\psi} (\tau \times \varphi_5)_3 \psi \\ & + \eta (m_1 - m_2) \Phi_0 \delta l \bar{\psi} i \gamma_5 \psi + \eta (m_1 + m_2) \Phi_0 \delta l \varphi_5 \bar{\psi} \tau i \gamma_5 \psi \\ \delta L_{ps} = & (-2 \eta \varphi_5 \Phi''_5 \delta l + \delta c_5) \bar{\psi} \psi + (2 \eta \varphi_5 \Phi'_5 \delta l + \delta d_5) \bar{\psi} i \gamma_5 \psi \\ & + [2 \xi (\varphi_5 \times \Phi'_5) \delta l + \delta \Phi'_5 - 2 \eta d_5 \varphi_5 \delta l] \bar{\psi} \tau \psi \\ & + [2 \xi (\varphi_5 \times \Phi''_5) \delta l + \delta \Phi''_5 + 2 \eta c_5 \varphi_5 \delta l] \bar{\psi} i \gamma_5 \tau \psi \end{aligned}$$

La condition  $\delta L_s + \delta L_{ps} = 0$  donne autant d'équations qu'il y a de termes linéairement indépendants ( $\bar{\psi} \psi$ ,  $\bar{\psi} i \gamma_5 \psi$ ,  $\bar{\psi} \tau_1 \psi$ ,  $\bar{\psi} \tau_2 \psi$ ,  $\bar{\psi} \tau_3 \psi$ , etc.). Remarquons que  $\varphi_5 \Phi''_5 \bar{\psi} \psi$  est indépendant de  $\delta c_5 \bar{\psi} \psi$ , le premier terme étant un scalaire, le second un pseudoscalaire. Nous obtenons alors le système d'équations:

$$\left. \begin{aligned} 1a) & \left[ \frac{m_1+m_2}{2} \delta \Phi_0 - 2 \eta \Phi'_5 \varphi_5 \delta l \right] \bar{\psi} \psi = 0 \\ b) & \delta c_5 \bar{\psi} \psi = 0 \\ 2a) & 2 \eta \Phi'_5 \varphi_5 \delta l \bar{\psi} i \gamma_5 \psi = 0 \\ b) & \delta d_5 + \eta (m_1 - m_2) \Phi_0 \varphi_{3,5} \delta l \bar{\psi} i \gamma_5 \psi = 0 \\ 3a) & \left[ (2 \xi \varphi_5 \times \Phi'_5 - 2 \eta d_5 \varphi_5) \delta l + \frac{m_1-m_2}{2} \delta \Phi_0 \varepsilon_3 \right] \bar{\psi} \tau \psi = 0 \\ b) & [\delta \Phi'_5 - \xi (m_1 - m_2) \Phi_0 \Theta_5 \delta l] \bar{\psi} \tau \psi = 0 \\ 4a) & (2 \xi \varphi_5 \times \Phi''_5 + 2 \eta c_5 \varphi_5) \delta l \bar{\psi} i \gamma_5 \tau \psi = 0 \\ b) & (\delta \Phi''_5 + \eta (m_1 + m_2) \varphi_5 \Phi_0 \delta l) \bar{\psi} i \gamma_5 \tau \psi = 0 \\ & \text{où } \varepsilon_3 \equiv (0, 0, 1); - \Theta_5 \equiv (\varphi_{2,5}, -\varphi_{1,5}, 0). \end{aligned} \right\} \quad (15)$$

e) A condition que  $\Phi'(l)$  et  $\Phi''(l)$  soient tels que l'interaction conserve la charge.

L'équation (4a), multipliée par  $\varphi$ , donne  $2\eta\varphi^2\delta l \cdot c_5 = 0$  d'où  $c_5 = 0$ . Ceci implique alors  $\varphi_5 \times \Phi_5'' = 0$ , donc  $\Phi_5'' = \lambda\varphi_5$  1a) et 4b) donnent maintenant

$$\left. \begin{aligned} \Phi_0 &= A \cos(2\eta\bar{\varphi}l) + B \sin(2\eta\bar{\varphi}l) \\ \Phi_5'' &= \frac{m_1 + m_2}{2} [-A \sin(2\eta\bar{\varphi}l) + B \cos(2\eta\bar{\varphi}l)] \frac{\varphi_5}{\bar{\varphi}} \end{aligned} \right\} \quad (16')$$

3a) multiplié par  $\varphi_5$  montre que  $2\eta\bar{\varphi}^2\delta l \cdot d_5 = 1/2 (m_1 - m_2) \varphi_{3,5} \delta\Phi_0$ , d'où

$$d_5 = \frac{m_1 - m_2}{2} [-A \sin(2\eta\bar{\varphi}l) + B \cos(2\eta\bar{\varphi}l)] \frac{\varphi_{3,5}}{\bar{\varphi}} \quad (16'')$$

expression qui satisfait à 2b). Enfin, de 3b), 2a) et 3a) on tire

$$\Phi_5' = \frac{m_1 - m_2}{2} \cdot \frac{\xi}{\eta} [-A \sin(2\eta\bar{\varphi}l) + B \cos(2\eta\bar{\varphi}l)] \frac{\Theta_5}{\bar{\varphi}}; \quad (\xi^2 = \eta^2) \quad (16''')$$

Dans ces expressions,  $A$  et  $B$  sont des constantes d'intégration indépendantes de  $l$ , mais peuvent encore être des fonctions (scalaires) de  $\varphi_{5,i}$ . Pour  $l = 0$  on obtient une interaction linéaire en  $\varphi_{5,i}$  en posant  $A = -1$  et  $B = 2\bar{\varphi}(m_1 + m_2)^{-1}g$ .

En résumé, l'invariance de  $L_s + L_{ps}$  par rapport à la transformation (12) impose l'existence des fonctions données par (16). (16) et (14) montrent alors que l'interaction est invariante sous  $PC$  et, lorsque  $m_1 = m_2$  ( $d_5 = \Phi_5' = 0$ ), elle conserve la parité et le spin isotopique. Remarquons que  $\Phi_5''$ ,  $d_5$  et  $\Phi_5'$  ont en commun le facteur  $\bar{\Phi} = -A \sin(2\eta\bar{\varphi}l) + B \cos(2\eta\bar{\varphi}l)$  tel que  $\Phi_0^2 + \bar{\Phi}^2 = A^2 + B^2$  est invariant (indépendant de  $l$ ). Pour  $m_1 = m_2$  cet invariant devient  $\Phi_0^2 + 1/m^2 \Phi_5''^2$  (car  $\varphi_5^2 \equiv \bar{\varphi}^2$ ).

Il nous reste maintenant à examiner la transformation des termes de la Lagrangienne totale contenant  $\gamma_\mu$  en facteur. Ces termes ne nous apprendront rien de neuf quant à l'interaction, puisque nous avons fait l'hypothèse

$$L_{pv}(0) = L_v(0) = 0 \quad (17)$$

donc que l'interaction avec le méson  $\pi$  est pseudoscalaire. Il nous suffit donc de déterminer  $L_{pv}$  et  $L_v$  de manière à satisfaire (17) et assurer l'invariance de la Lagrangienne. Rappelons que la partie libre  $L_0$  des Fermions et leur interaction électromagnétique  $L_0$  s'écrivent respectivement

$$L_0 = -\frac{1}{2} [\bar{\psi} \gamma_\mu \partial_\mu \psi - \partial_\mu \bar{\psi} \gamma_\mu \psi] \quad (18')$$

$$L_e = i e \bar{\psi} \gamma_\mu A_\mu^{1+\tau_3} \psi \quad (18'')$$

Comme la transformation (12) est continue, la présence des dérivées dans (18') exige l'introduction de fonctions  $\Phi_{\mu 5}(l, \varphi)$  dans  $L_{pv}$ . Remarquons



qu'au moyen de  $\varphi_5$  on peut former le pseudovecteur  $\partial_\mu \varphi_5$  et le vecteur  $\varphi_5 \times \partial_\mu \varphi_5$ . Ecrivons, à titre d'essai, pour l'interaction:

$$L_{pv} = i \bar{\psi} \tau (\Phi'_{\mu 5} + \Phi''_{\mu 5} \gamma_5) \gamma_\mu \psi \quad (18'')$$

$$L_v = i \bar{\psi} \tau (\Phi'_\mu + \Phi''_\mu \gamma_5) \gamma_\mu \psi \quad (18''')$$

La variation de ces termes est analogue à (3a) et  $\delta (L_0 + L_e + L_{pv} + L_v) = 0$  donne les équations (voir (4)):

$$\left. \begin{aligned} \delta \Phi'_{\mu 5} &= 2 \varphi_5 \times (\Phi''_\mu \eta - \Phi'_\mu \xi) \delta l + \xi [\partial_\mu (\varphi_5 \delta l) + e A_\mu \Theta_5 \delta l] \\ \delta \Phi''_{\mu 5} &= 2 \varphi_5 \times (\Phi'_\mu \eta - \Phi''_\mu \xi) \delta l - \eta [\partial_\mu (\varphi_5 \delta l) + e A_\mu \Theta_5 \delta l] \\ \delta \Phi'_\mu &= 2 \varphi_5 \times (\Phi''_{\mu 5} \eta - \Phi'_{\mu 5} \xi) \delta l \\ \delta \Phi''_\mu &= 2 \varphi_5 \times (\Phi'_{\mu 5} \eta - \Phi''_{\mu 5} \xi) \delta l \end{aligned} \right\} \quad (19)$$

Les deux dernières équations montrent la nécessité d'introduire  $L_v$  (car  $\varphi_5 \times (\Phi''_{\mu 5} \eta - \Phi'_{\mu 5} \xi) = 0$  n'est pas compatible avec les deux premières équations), la première équation celle d'introduire  $\Phi_{\mu 5}$  (après multiplication scalaire avec  $\varphi_5$  on obtiendrait  $\xi (\varphi_5 \partial_\mu \varphi_5 \delta l + e A_\mu \Theta_5 \varphi_5 \delta l) = 0$  si  $\Phi_{\mu 5} = 0$ ). Les équations (19) possèdent une solution, ce qui justifie l'essai (18'') et (18'''):

$$\left. \begin{aligned} \Phi'_\mu &= \frac{1}{2 \bar{\varphi}^2} (\partial_\mu \varphi_5 + e A_\mu \Theta_5) \times \varphi_5 + \alpha_\mu \cos [(\xi + \eta) 2 \bar{\varphi} l] \\ &\quad + \beta_\mu \sin [(\xi + \eta) 2 \bar{\varphi} l] + \gamma_\mu \cos [(\xi - \eta) 2 \bar{\varphi} l] \\ &\quad + \delta_\mu \sin [(\xi - \eta) 2 \bar{\varphi} l] + \eta_{\mu 5} \varphi_5 \\ \Phi''_\mu &= -\alpha_\mu \cos [(\xi + \eta) 2 \bar{\varphi} l] - \beta_\mu \sin [(\xi + \eta) 2 \bar{\varphi} l] \\ &\quad + \gamma_\mu \cos [(\xi - \eta) 2 \bar{\varphi} l] + \delta_\mu \sin [(\xi - \eta) 2 \bar{\varphi} l] + \chi_{\mu 5} \varphi_5 \\ \Phi'_{\mu 5} &= \xi [\partial_\mu (\varphi_5 l) + e A_\mu \Theta_5 l] + 2 \varphi_5 \times \int dl (\Phi''_\mu \eta - \Phi'_\mu \xi) \\ \Phi''_{\mu 5} &= -\eta [\partial_\mu (\varphi_5 l) + e A_\mu \Theta_5 l] + 2 \varphi_5 \times \int dl (\Phi'_\mu \eta - \Phi''_\mu \xi) \end{aligned} \right\} \quad (20)$$

$\alpha_\mu, \beta_\mu, \gamma_\mu, \delta_\mu, \eta_{\mu 5}, \chi_{\mu 5}$  sont des constantes d'intégration avec  $\alpha_\mu \cdot \varphi_5 = 0$ ,  $\beta_\mu \cdot \varphi_5 = 0$ , etc.

L'analogie de ces solutions avec les expressions (6) du paragraphe précédent saute aux yeux. Montrons comment on peut en extraire les solutions qui satisfont (17):

Posons  $\alpha_\mu = \gamma_\mu = -(2 \bar{\varphi})^{-2} (\partial_\mu \varphi_5 + e A_\mu \Theta_5) \times \varphi_5$ ;  $\eta_{\mu 5} = \chi_{\mu 5} = \beta_\mu = \delta_\mu = 0$

Pour  $\xi = \eta = 1/2$  f (20) et (21) donnent:

$$\left. \begin{aligned} \Phi'_\mu &= \frac{1}{2\bar{\varphi}^3} [(\partial_\mu \varphi_5 + e A_\mu \Theta_5) \times \varphi_5] (1 - \cos(2f\bar{\varphi}l)) \\ \Phi''_\mu &= -\Phi'_\mu \\ \Phi''_{\mu 5} &= -f [\partial_\mu (\varphi_5 l) + e A_\mu \Theta_5 l] \\ &\quad - \frac{f}{2\bar{\varphi}^2} [(\partial_\mu \varphi_5 + e A_\mu \Theta_5) \times \varphi_5] \times \varphi_5 \left( l - \frac{\sin(2f\bar{\varphi}l)}{2f\bar{\varphi}} \right) \\ \Phi'_{\mu 5} &= -\Phi''_{\mu 5} \end{aligned} \right\} \quad (22)$$

Pour  $\xi = -\eta = -1/2f$  on obtient les mêmes expressions pour  $\Phi'_\mu$  et  $\Phi''_{\mu 5}$ , mais des signes opposés pour  $\Phi''_\mu$  et  $\Phi'_{\mu 5}$ :  $\Phi'_\mu = +\Phi''_\mu$ . Les solutions (22) pour  $\Phi'_\mu$  et  $\Phi''_{\mu 5}$  sont identiques aux solutions correspondantes (11) du paragraphe précédent.

Les interactions (18''') et (18'''), apparemment, ne conservent pas la parité. Cependant, pour  $m_1 = m_2$ ,  $L_{ps}$  conserve la parité, et, comme  $L_{pv}(0) = L_v(0) = 0$ , la Lagrangienne totale la conserve aussi. Grâce à l'invariance, il en sera de même pour tout  $l$ , en particulier pour  $l'$  tel que  $L_{ps}(l') = 0$ . On a donc ici l'exemple d'une interaction  $PV$  ne conservant pas la parité, qui est équivalente (en première approximation) à une interaction  $PS$  conservant la parité.

L'invariance de la Lagrangienne nous permet de formuler le théorème d'équivalence. Dans (16), posons  $A = -1$ ,  $B = 2g\bar{\varphi}(m_1 + m_2)^{-1}$ . Avec ce choix, on obtient pour  $l = 0$ :

$$\left. \begin{aligned} L_s(0) &= -m_1 \bar{\psi} \frac{1+\tau_3}{2} \psi - m_2 \bar{\psi} \frac{1-\tau_3}{2} \psi \\ L_{ps}(0) &= \bar{\psi} \left[ i g \tau \varphi_5 \gamma_5 - \frac{m_1 - m_2}{m_1 + m_2} g \left( \frac{\xi}{\eta} \tau \Theta_5 + i \varphi_{3,5} \gamma_5 \right) \right] \psi \end{aligned} \right\} \quad (23)$$

$L_{ps} = 0$  pour  $\text{tg}(2f\bar{\varphi}l) = A/B = -2g\bar{\varphi}(m_1 + m_2)^{-1}$ . Pour cette valeur de  $l$ ,  $L_{pv}$  vaut en 1<sup>re</sup> approximation:

$$L_{pv}(l') = i f \frac{g}{(m_1 + m_2) f} \bar{\psi} \left( -\frac{\xi}{\eta} + \gamma_5 \right) \gamma_\mu \tau \partial_\mu \varphi_5 \psi.$$

Nous avons donc équivalence pour  $g = (m_1 + m_2)f$ . Le coefficient du terme de  $L_{ps}$  qui ne conserve pas la parité vaut, pour  $l = 0$ :  $(m_1 - m_2)(m_1 + m_2)^{-1}g = (m_1 - m_2)f$ . Lorsque  $m_1 = m_2$ , ce coefficient est nul, et  $g = 2mf$ . Pour  $m_1 = 0$  (neutrino), il vaut  $\pm g$ .

#### 4. Interactions de Fermi

Dans ce paragraphe, nous allons voir que le postulat de l'invariance de la Lagrangienne totale sous la transformation (12) a des conséquences intéressantes pour les interactions de FERMI. A cet effet nous groupons les Fermions en paires  $\psi_j = (p, n), (\nu e), (\nu \mu)$ , où  $\psi_j$  sont des spineurs à

deux composantes dans l'espace de charge. Ceci n'implique pas que les masses des particules d'une paire soient égales. On peut en effet écrire pour le terme d'inertie de chaque paire  $\psi_j$  l'expression (14') :

$$L_s^{(j)} = m_1^{(j)} \Phi_0^{(j)}(l) \bar{\psi}_j(l) \frac{1+\tau_3}{2} \psi_j(l) + m_2^{(j)} \Phi_0^{(j)}(l) \bar{\psi}_j \frac{1-\tau_3}{2} \psi_j(l) \quad (14')$$

Cependant, comme le neutrino apparaît dans plusieurs paires, donc dans plusieurs  $L_s^{(j)}$ , sa masse doit être nulle. Il va sans dire que les opérateurs  $\tau$  n'ont, dans cette expression et dans les suivantes, qu'une signification formelle, donnée par leur action sur les  $\psi_j$ .

Nous postulons maintenant l'invariance de la Lagrangienne totale lorsque chaque paire est soumise à la transformation (12) :

$$\delta\psi_j = i(\xi + \eta\gamma_5) \tau \varphi_5 \psi_j \delta l (\xi^2 = \eta^2) \quad (12)$$

La Lagrangienne que nous considérons est la suivante :

- 1° Système nucléons - mésons  $\pi^{\dagger}$
- 2° Partie libre des leptons<sup>†</sup>
- 3° Interactions de FERMÍ des paires  $\psi_j$ .

1° a été décrit au paragraphe précédent dans les équations (23) (avec  $m_1 = m_2$ ), (18) et (22).

2° Il est possible d'exclure, si on le désire, l'interaction directe des leptons avec le méson  $\pi$ . Il suffit de poser, dans (14) et (16),  $m_1 = 0$ ,  $A = -1$ ,  $B = 0$ , ce qui est possible, puisque  $A$  et  $B$  ne dépendent pas du paramètre  $l$ . Ceci donne, pour  $l = 0$ ,

$$L_s(0) + L_{ps}(0) = -\frac{1}{2} m_2 \bar{\psi}_j (1 - \tau_3) \psi_j = -m_e \bar{\psi}_e \psi_e,$$

pour l'électron, par exemple). La désintégration du méson  $\pi$  se fait alors par l'intermédiaire d'une paire virtuelle de nucléons :

$$\pi^+ \rightarrow p + \bar{n} \rightarrow \mu^+ + \nu \text{ ou } e^+ + \nu.$$

(18) et (22) restent valables pour les termes vectoriels.

3° Considérons maintenant l'interaction de FERMÍ  $L_F$  :

$$L_F = [\bar{\psi}_i O_r \tau_+ \psi_i] [\bar{\psi}_j O_r (a_r + b_r \gamma_5) \tau_- \psi_j] + h. c. \quad (24)$$

$$O_r = 1, \gamma_5, \gamma_{\mu\nu}, \gamma_\mu, \gamma_\mu \gamma_5 \quad (\gamma_\mu = \gamma_\mu^+)$$

Lorsque  $\xi = \eta = 1/2 f$  dans (12), on obtient pour la variation de  $L_F$  :

$$\begin{aligned} \delta L_F = \frac{1}{2} i f \delta l \{ & [\bar{\psi}_i (-1) (1 - \gamma_5) O_r \tau \varphi \tau_+ \psi_i] [\bar{\psi}_j O_r (a_r + b_r \gamma_5) \tau_- \psi_j] \\ & + [\bar{\psi}_i O_r (1 + \gamma_5) \tau_+ \tau \varphi \psi_i] [\bar{\psi}_j O_r (a_r + b_r \gamma_5) \tau_- \psi_j] \\ & + [\bar{\psi}_i O_r \tau_+ \psi_i] [\bar{\psi}_j (-1) (1 - \gamma_5) O_r (a_r + b_r \gamma_5) \tau \varphi \tau_- \psi_j] \\ & + [\bar{\psi}_i O_r \tau_+ \psi_i] [\bar{\psi}_j O_r (1 + \gamma_5) (a_r + b_r \gamma_5) \tau_- \tau \varphi \psi_j] \} \\ & + h. c. \end{aligned}$$

<sup>†</sup>) Avec leurs interactions électromagnétiques.

Il est élémentaire, mais fastidieux, de montrer que seule une combinaison particulière de  $V$  et  $A$  est invariante. Nous allons, à titre d'exemple, écrire quelques termes de  $\delta L_F$ <sup>g)</sup>.

Deux termes typiques de  $\delta L_F$  pour  $O_r = 1$ ,  $\gamma_5$ , sont respectivement :

$$\left. \begin{aligned} \frac{1}{2} i f \delta l \cdot (-\sqrt{2} \varphi^*) [\bar{\psi}_i \tau_+ \psi_i] [\bar{\psi}_j (a_s + b_s \gamma_5) \tau_3 \psi_j] \text{ et} \\ \frac{1}{2} i f \delta l \cdot (-\sqrt{2} \varphi^*) [\bar{\psi}_i \gamma_5 \tau_+ \psi_i] [\bar{\psi}_j (a_{PS} \gamma_5 + b_{PS}) \tau_3 \psi_j] \end{aligned} \right\} \quad (26)$$

qui ne sont compensés par aucun autre terme. Les expressions correspondantes pour  $O_r = \gamma_\mu$ ,  $\gamma_\mu \gamma_5$  sont resp. :

$$\left. \begin{aligned} \frac{1}{2} i f \delta l \cdot (-\sqrt{2} \varphi^*) [\bar{\psi}_i \gamma_\mu \tau_+ \psi_i] \\ \quad \cdot [\bar{\psi}_j \gamma_\mu (a_V + b_V \gamma_5) (1 + \gamma_5) \tau_3 \psi_j] \text{ resp.} \\ \frac{1}{2} i f \delta l \cdot (-\sqrt{2} \varphi^*) [\bar{\psi}_i \gamma_\mu \gamma_5 \tau_+ \psi_i] \\ \quad \cdot [\bar{\psi}_j \gamma_\mu (a_A + b_A \gamma_5) (1 + \gamma_5) \tau_3 \psi_j] \end{aligned} \right\} \quad (27)$$

qui sont nulles pour  $a_v = -b_v$ ;  $a_A = -b_A$ . Considérons encore deux autres termes de  $\delta L_F$  pour  $O_r = \gamma_\mu$ ,  $\gamma_\mu \gamma_5$  :

$$\left. \begin{aligned} \frac{1}{2} i f \delta l \cdot (\sqrt{2} \varphi) [\bar{\psi}_i \gamma_\mu (1 + \gamma_5) \tau_3 \psi_i] \\ \quad \cdot [\bar{\psi}_j \gamma_\mu (a_V + b_V \gamma_5) \tau \psi_j] \text{ resp.} \\ \frac{1}{2} i f \delta l \cdot (\sqrt{2} \varphi) [\bar{\psi}_i \gamma_\mu (1 + \gamma_5) \tau_3 \psi_i] [\bar{\psi}_j \gamma_\mu (a_A \gamma_5 + b_A) \tau_- \psi_j] \end{aligned} \right\} \quad (28)$$

qui se compensent pour  $a_V = -b_A$  et  $b_V = -a_A$ , d'où

$$a_V = a_A = -b_V = -b_A$$

Finalement, le calcul complet montre que pour  $\xi = \eta$  resp.  $\xi = -\eta$ , la seule forme invariante de  $L_F$  est :

$$a [\bar{\psi}_i \gamma_\mu (1 - \gamma_5) \tau_+ \psi_i] [\bar{\psi}_j \gamma_\mu (1 - \gamma_5) \tau_- \psi_j] + h. c. \text{ resp.} \quad (29)$$

$$a [\bar{\psi}_i \gamma_\mu (1 + \gamma_5) \tau_+ \psi_i] [\bar{\psi}_j \gamma_\mu (1 + \gamma_5) \tau_- \psi_j] + h. c. \quad (30)$$

BLUDMAN<sup>4)</sup> a considéré une transformation analogue à (12), où  $\varphi_5 \delta l$  est remplacé par  $\delta \omega$ , vecteur indépendant de  $x$ . En plus, il postule que les interactions de FERMÍ résultent de l'interaction du courant  $J_\mu$  avec lui-même, où  $J_\mu$  est donné par

$$J_\mu = \sum_j i \bar{\psi}_j \gamma_\mu \frac{1}{2} (1 + \gamma_5) \tau \psi_j$$

g) Pour le calcul de  $\delta L_F$  on utilisera

$$\begin{aligned} [\tau \varphi, \tau_+]_- &= \sqrt{2} \tau_3 \varphi - 2 \varphi_3 \tau_+ & [\tau \varphi, \tau_+]_+ &= \sqrt{2} \varphi \\ [\tau \varphi, \tau_-]_- &= -\sqrt{2} \tau_3 \varphi^* + 2 \varphi_3 \tau_- & [\tau \varphi, \tau_-]_+ &= \sqrt{2} \varphi^* \end{aligned}$$

$$L_F = G \mathbf{J}_\mu \cdot \mathbf{J}_\mu \sum_{i,j} \left\{ G [\bar{\psi}_i \gamma_\mu (1 + \gamma_5) \tau_i \psi_i] [\bar{\psi}_j \gamma_\mu (1 + \gamma_5) \tau_j \psi_j] + \frac{G}{4} [\bar{\psi}_i \gamma_\mu (1 + \gamma_5) \tau_3 \psi_i] \cdot [\bar{\psi}_j \gamma_\mu (1 + \gamma_5) \tau_3 \psi_j] \right\} \quad (31)$$

Si l'on postule seulement l'invariance sous la transformation (12), on arrive aux conclusions suivantes: 1° En excluant les termes de (31) contenant  $\tau_3$ , seul (29) est invariant pour  $\xi = \eta$ , ou (30) pour  $\xi = -\eta$ ; 2° En admettant les termes avec  $\tau_3$ , (31) est invariant, mais les deux signes devant  $\gamma_5$  sont possibles, ceci aussi bien pour  $\xi = \eta$  que pour  $\xi = -\eta$ . Lorsque  $\xi = \eta$ , par exemple, les termes (27) sont nuls pour  $a_V = -b_V$ ,  $a_A = -b_A$ . Pour  $a_V = b_V$  et  $a_A = b_A$ , ils ne sont pas nuls, mais compensés par la variations du dernier terme de (31). Le raisonnement est inverse pour  $\xi = -\eta$  (remplacer  $1 + \gamma_5$  par  $1 - \gamma_5$  dans (27)).

### 5. Interactions fortes des particules étrangères

Il est intéressant de voir s'il existe un groupe analogue au groupe (12) s'appliquant à d'autres interactions fortes où intervient le méson  $\pi$ .

Considérons l'interaction de YUKAWA entre  $A$ ,  $\Sigma$  et  $\pi$ , conservant le spin isotopique:

$$L_{ps} = \bar{\Sigma} \pi_5 (a_2 + i b_2 \gamma_5) A^0 + h.c. + \frac{1}{i} \bar{\Sigma} (a_3 + i b_3 \gamma_5) \Sigma \times \pi \quad (30)$$

Une forme particulière de (30) est aisée à discuter: c'est celle où l'on fait les hypothèses de la symétrie restreinte:

1° Les masses nues de  $A^0$  et de  $\Sigma$  sont égales.

2°  $a_2 = a_3$ ,  $b_2 = b_3$ .

On est alors amené à poser

$$Y^0 = \frac{1}{\sqrt{2}} (A^0 + \Sigma^0) Z^0 = \frac{1}{\sqrt{2}} (A^0 + \Sigma^0) \psi_1 \equiv \begin{pmatrix} Y^+ \\ Y^0 \end{pmatrix} \psi_2 \equiv \begin{pmatrix} Z^0 \\ Z^- \end{pmatrix} \quad (31)$$

Cherchons l'expression de (30) en fonction des grandeurs définies en (31)

$$\frac{1}{i} \bar{\Sigma} \times \Sigma \cdot \pi = \frac{1}{i} (\bar{\Sigma}_2 \Sigma_3 - \bar{\Sigma}_3 \Sigma_2) \pi_1 + \frac{1}{i} (\bar{\Sigma}_3 \Sigma_1 - \bar{\Sigma}_1 \Sigma_3) \pi_2 + \frac{1}{i} (\bar{\Sigma}_1 \Sigma_2 - \bar{\Sigma}_2 \Sigma_1) \pi_3$$

$$\text{avec} \quad \pi_1 = \frac{1}{\sqrt{2}} (\pi^+ + \pi^-) \pi_2 = \frac{1}{\sqrt{2}} (\pi^+ - \pi^-) \pi_3 = \pi^0$$

$$\Sigma_1 = \frac{1}{\sqrt{2}} (\Sigma^+ + \Sigma^-), \text{ etc.}$$



$$\begin{aligned}
\frac{1}{i} \bar{\Sigma} \times \Sigma \cdot \pi &= (\bar{\Sigma}^0 \Sigma^- - \bar{\Sigma}^+ \Sigma^0) \pi^+ + (\bar{\Sigma}^- \Sigma^0 - \bar{\Sigma}^0 \Sigma^+) \pi^- + (\bar{\Sigma}^+ \Sigma^+ - \bar{\Sigma}^- \Sigma^-) \pi^0 \\
\bar{\Sigma} \pi \Lambda^0 &= + \bar{\Sigma}^+ \Lambda^0 \pi^+ + \bar{\Sigma}^- \Lambda^0 \pi^- + \bar{\Sigma}^0 \Lambda^0 \pi^0 \\
\bar{\Lambda}^0 \Sigma \pi &= \bar{\Lambda}^0 \Sigma^- \pi^+ + \bar{\Lambda}^0 \Sigma^+ \pi^- + \bar{\Lambda}^0 \Sigma^0 \pi^0 \\
\frac{1}{i} \bar{\Sigma} \times \Sigma \cdot \pi + \bar{\Sigma} \pi \Lambda^0 + \bar{\Lambda}^0 \Sigma \pi &= \\
&= \sqrt{2} \bar{\Sigma}^+ \pi^+ \frac{1}{\sqrt{2}} (\Lambda^0 - \Sigma^0) + \sqrt{2} \cdot \frac{1}{\sqrt{2}} (\bar{\Lambda}^0 - \bar{\Sigma}^0) \pi^- \Sigma^+ \\
&\quad + \bar{\Sigma}^+ \Sigma^+ \pi^0 - \frac{1}{\sqrt{2}} (\bar{\Lambda}^0 - \bar{\Sigma}^0) \pi^0 \frac{1}{\sqrt{2}} (\Lambda^0 - \Sigma^0) \\
&\quad + \sqrt{2} \frac{1}{\sqrt{2}} (\bar{\Sigma}^0 + \bar{\Lambda}^0) \pi^+ \Sigma^- + \sqrt{2} \bar{\Sigma}^- \pi^- \frac{\Lambda^0 + \Sigma^0}{\sqrt{2}} - \bar{\Sigma}^- \Sigma \pi^0 \\
&\quad + \frac{\bar{\Lambda}^0 + \bar{\Sigma}^0}{\sqrt{2}} \pi^0 \frac{\Lambda^0 + \Sigma^0}{\sqrt{2}} = \bar{\psi}_1 \tau \pi \psi_1 + \bar{\psi}_2 \tau \pi \psi_2
\end{aligned}$$

(30) devient donc :

$$L_{ps} = \bar{\psi}_1 (a + i b \gamma_5) \tau \pi \psi_1 + \bar{\psi}_2 (a + i b \gamma_5) \tau \pi \psi_2 \quad (32)$$

(32) se compose de deux termes qui sont chacun formellement identiques à (13b). Tous les raisonnements faits au paragraphe 3 s'appliquent à (32) si l'on exige l'invariance par rapport aux transformations

$$\delta \psi_j = i (\xi + \eta \gamma_5) \tau \pi_5 \psi_j \quad \delta l \quad j = 1, 2 \quad (33)$$

(33) peut aussi s'écrire

$$\begin{aligned}
\delta \Sigma &= (\xi + \eta \gamma_5) (i \pi \Lambda + \Sigma \times \pi) \delta l \\
\delta \Lambda &= (\xi + \eta \gamma_5) i \pi \Sigma \delta l
\end{aligned}$$

Nous pouvons donc énoncer le théorème suivant :

*Lorsque les interactions entre les particules  $\Lambda$ ,  $\Sigma$  et  $\pi$  conservent le spin isotopique, satisfont aux conditions de la symétrie restreinte et sont invariantes par rapport au groupe de transformation mésonique (32), elles sont nécessairement invariantes par rapport à  $P$  et  $C$  séparément.*

L'expérience ne permet pas encore de décider si les hypothèses de la symétrie restreinte sont valables.

## 6. Propriétés de la transformation mésonique

Cherchons d'abord les invariants de la transformation (12)  $\delta \psi_j = i f 1/2 (1 \pm \gamma_5) \tau \varphi_5 \psi_j \delta l$ . En premier lieu, nous trouvons le courant nucléonique

$$i \bar{\psi}_j \gamma_\mu \psi_j = i \bar{\psi}_p \gamma_\mu \psi_p + i \bar{\psi}_n \gamma_\mu \psi_n \quad (33)$$

et des expressions semblables pour les paires  $(\mu, \nu)$ ,  $(e, \nu)$ ,  $(\Sigma^+, Y^0)$ ,  $(Z^0, \Sigma^-)$ . Un deuxième invariant est

$$i \bar{\psi}_j \gamma_5 \gamma_\mu \psi_j \quad (34)$$

alors que

$$\bar{\psi}_j \psi_j, \quad \bar{\psi}_j \gamma_5 \psi_j, \quad \bar{\psi}_j \gamma_{\mu\nu} \psi_j \quad (35)$$

ne sont pas invariants. (33), (34) et (35) ont pour conséquence la sélection de  $V + A$  ou  $V - A$  dans les interactions de FERMÍ.

Le courant électrique  $J_e = ie \psi_j \gamma_\mu 1/2 (1 + \tau_3) \psi_j$  est modifié de la quantité infinitésimale

$$\delta J_e = -ie f \bar{\psi} \frac{1}{2} (1 \pm \gamma_5) \gamma_\mu \boldsymbol{\tau} \boldsymbol{\Theta}_5 \psi \delta l; \quad \boldsymbol{\tau} \boldsymbol{\Theta}_5 = -(\boldsymbol{\tau} \times \boldsymbol{\varphi})_3 \quad (36)$$

Ceci est heureux. En effet, si, pour  $l = 0$  l'interaction de YUKAWA est purement pseudoscalaire, elle comporte des dérivées  $\partial_\mu \boldsymbol{\varphi}_5$  pour  $l \neq 0$ . (36) a pour conséquence que tout terme  $f \boldsymbol{\tau} \partial_\mu \boldsymbol{\varphi}_5$  est accompagné d'un terme  $fe A_\mu \boldsymbol{\tau} \boldsymbol{\Theta}_5$ . Ainsi, l'invariance (22) assure *automatiquement* l'invariance de jauge.

Enfin, nous avons encore les invariants

$$\bar{\psi} (h \boldsymbol{\Phi}_0 + i g \boldsymbol{\tau} \boldsymbol{\Phi}_5 \gamma_5) \psi \quad \text{et} \quad \boldsymbol{\Phi}_0^2 + \boldsymbol{\Phi}_5^2 \quad (37)$$

$\boldsymbol{\Phi}_0$  et  $\boldsymbol{\Phi}_5$  donnés par (7) (voir aussi (16)) et le commentaire qui suit (37) montre comment les termes de masse sont couplés aux termes d'interaction pseudoscalaire par la transformation (12), qui peut s'exprimer comme une rotation dans l'espace sous-tendu par  $\boldsymbol{\Phi}_0$  et  $\boldsymbol{\Phi}_5$ .

Si l'on fait abstraction du facteur  $(1 \pm \gamma_5)$ , (12) représente pour  $\psi$  une rotation d'angle  $f \boldsymbol{\varphi} dl(x)$  dans l'espace isotopique. Cependant,  $\boldsymbol{\Phi}_0$ ,  $\boldsymbol{\Phi}_5$ ,  $\boldsymbol{\Phi}_{\mu 5}$ ,  $\boldsymbol{\Phi}_\mu$  ne sont pas affectés par cette rotation (par exemple  $\boldsymbol{\Phi}_5 = A(l) \cdot \boldsymbol{\varphi}_5$  donc  $\boldsymbol{\Phi}_5$  reste parallèle à  $\boldsymbol{\varphi}_5$  lors de (12)). (12) n'entraîne donc pas nécessairement la conservation du spin isotopique.

La transformation (12) est continue. A toute invariance de ce type correspond une équation de continuité,  $\partial_\mu J_\mu = 0$  (voir NOETHER et BLUDMAN<sup>5</sup>).

Considérons la fonction  $L(y^A, y^B, \dots)$ , où  $y^A = \psi, \bar{\psi}, \boldsymbol{\Phi}_0, \boldsymbol{\Phi}_5$ , etc., invariante sous la transformation

$$\delta y^A = a^A \delta l + b_\mu^A \partial_\mu \delta l \quad (38)$$

où  $\delta l$  est le paramètre et  $a^A$  et  $b_\mu^A$  des fonctions de  $x$ .

$$\begin{aligned} \delta L = 0 &= \frac{\partial L}{\partial y^A} \delta y^A + \frac{\partial L}{\partial (\partial_\mu y^A)} \delta (\partial_\mu y^A) \quad \text{avec sommation sur } A \\ &= \left( \frac{\partial L}{\partial y^A} - \partial_\mu \frac{\partial L}{\partial (\partial_\mu y^A)} \right) \delta y^A + \partial_\mu \left[ \frac{\partial L}{\partial (\partial_\mu y^A)} \delta y^A \right] \\ &= [L]_A \delta y^A + \partial_\mu \left[ \frac{\partial L}{\partial (\partial_\mu y^A)} \delta y^A \right] \\ &= [[L]_A a^A - \partial_\mu ([L]_A b_\mu)] \delta l + \\ &\quad \partial_\mu \left[ [L]_A b_\mu^A \delta l + \frac{\partial L}{\partial (\partial_\mu y^A)} (a^A \delta l + b_\lambda^A \partial_\lambda \delta l) \right] \quad (39) \end{aligned}$$

Les fonctions  $\Phi^i$  ne satisfont pas à des équations de mouvement  $[L]_{\Phi^i}=0$ . Cependant, elles satisfont aux identités

$$\sum_A \{[L]_A a^A - \partial_\mu ([L]_A b_\mu^A)\} = 0 \quad (40)$$

Considérons d'abord l'interaction, conservant la parité, des nucléons avec le méson neutre  $\pi^0$ . Nous avons alors la fonction  $L(\psi, \bar{\psi}, \Phi_0, \Phi_5, \Phi_{\mu 5})$  suivante :

$$L = -\frac{1}{2} (\bar{\psi} \gamma_\mu \partial_\mu \psi - \partial_\mu \bar{\psi} \gamma_\mu \psi) + \hbar \bar{\psi} \Phi_0 \psi + i g \bar{\psi} \gamma_5 \Phi_5 \psi + i f \bar{\psi} \gamma_5 \gamma_\mu \Phi_{\mu 5} \psi \quad (41)$$

invariante sous la transformation

$$\left. \begin{aligned} \delta \psi &= i f \gamma_5 \varphi_5 \psi \quad \delta \bar{\psi} = i f \bar{\psi} \gamma_5 \varphi_5 \quad \delta \Phi_0 = 2 f g / \hbar \Phi_5 \varphi_5 \delta l \\ \delta \Phi_5 &= -2 f h / g \Phi_0 \varphi_5 \delta l \quad \delta \Phi_{\mu 5} = -(\partial_\mu \varphi_5) \delta l - \varphi_5 (\partial_\mu \delta l) \end{aligned} \right\} \quad (42)$$

Donc, dans (38)

$$\begin{aligned} a^\nu &= i f \gamma_5 \varphi_5 \psi & a^{\bar{\nu}} &= i f \bar{\psi} \gamma_5 \varphi_5 & a^{\Phi_0} &= \frac{2 f g}{\hbar} \Phi_5 \varphi_5 & a^{\Phi_5} &= \frac{2 f h}{g} \Phi_0 \varphi_5 \\ a^{\Phi_{\mu 5}} &= -\partial_\mu \varphi_5 & b^\nu &= \bar{b}^{\bar{\nu}} = b^{\Phi_0} = b^{\Phi_5} = 0 & b^{\Phi_{\mu 5}} &= -\varphi_5 \delta_{\mu\nu}. \end{aligned}$$

Avec (41) et (42) on vérifie aisément (40). (39) devient alors :

$$\partial_\mu \left[ [L]_A b_\mu^A \delta l + \frac{\partial L}{\partial (\partial_\mu y^A)} (a^A \delta l + b_\lambda^A \partial_\lambda \delta l) \right] = 0 \quad (43)$$

Comme  $\delta l$ ,  $\partial_\mu \delta l$ ,  $\partial_\mu \partial_\lambda \delta l$  sont des variations indépendantes, (43) fournit les trois équations :

$$\partial_\mu \left[ [L]_A b_\mu^A + \frac{\partial L}{\partial (\partial_\mu y^A)} a^A \right] = 0 \quad (44)$$

$$[L]_A b_\mu^A + \frac{\partial L}{\partial (\partial_\mu y^A)} a^A + \partial_\lambda \left( \frac{\partial L}{\partial (\partial_\mu y^A)} b_\lambda^A \right) = 0 \quad (45)$$

$$\frac{1}{2} \left[ \frac{\partial L}{\partial (\partial_\mu y^A)} b_\lambda^A + \frac{\partial L}{\partial (\partial_\lambda y^A)} b_\mu^A \right] = 0 \quad (46)$$

(44) donne l'équation de continuité cherchée, avec

$$J_\mu = [L]_A b_\mu^A + \frac{\partial L}{\partial (\partial_\mu y^A)} a^A \quad (47)$$

En définissant :

$$U_{\mu\lambda} = \frac{\partial L}{\partial (\partial_\mu y^A)} b_\lambda^A \quad (48)$$

(46) devient

$$U_{\mu\lambda} + U_{\lambda\mu} = 0 \quad (49)$$

et (45)

$$J_\mu = \partial_\lambda U_{\mu\lambda} \quad (50)$$

Cependant, en calculant  $J_\mu$  au moyen de (41) et (42), on trouve  $J_\mu = 0$ . Ceci provient du fait que le seul  $b_\mu^A \neq 0$  est  $b_\mu^{\Phi\mu 5}$ . Mais  $\partial L / \partial (\partial_\mu \Phi_{\lambda 5}) = 0$ .

La transformation générale (12) présente les mêmes propriétés. L'équation de continuité  $\partial_\mu J_\mu = 0$  est donc triviale et ne fournit aucun résultat nouveau.

## 7. Conclusion

Le postulat d'invariance par rapport au groupe mésonique implique la conservation de la parité des interactions des nucléons avec les mésons  $\pi$ , la non-conservation de la parité des interactions de FERMÍ des nucléons avec les paires de leptons  $(\mu, \nu)$  et  $(e, \nu)$ , parmi lesquelles il sélectionne les formes  $V + A$  ou  $V - A$ . Il établit donc une corrélation entre des faits expérimentaux qui n'avaient pas trouvé place, jusqu'ici, dans une théorie unifiée.

Il donne un critère qui permet de distinguer les interactions de YUKAWA qui conservent la parité de celles qui ne la conservent pas.

Ainsi les propriétés de symétrie des interactions des nucléons et des leptons, que l'expérience a établie jusqu'à ce jour, sont entièrement décrites par le postulat.

Enfin, il donne certaines indications concernant les interactions fortes des particules étranges.

Les auteurs remercient vivement le professeur E. C. G. STUECKELBERG, grâce auquel le présent travail a pu être mené à bien. L'un des deux (H. R.) remercie la division théorique du CERN pour son hospitalité.

Genève, le 28 mai 1959.

## Bibliographie

- <sup>1)</sup> H. Ruegg, *Helv. Phys. Acta* **32**, 256 (1959).
- <sup>2)</sup> F. J. Dyson, *Phys. Rev.* **73**, 929 (1948); L. L. Foldy, *Phys. Rev.* **84**, 168 (1951).
- <sup>3)</sup> E. Stueckelberg et A. Pétermann, *Helv. Phys. Acta* **26**, 499 (1953); A. Pétermann, *Nucl. Phys.* **3**, 592 (1957).
- <sup>4)</sup> S. A. Bludman, *Nuovo Cimento* **9**, 433 (1958).
- <sup>5)</sup> E. Noether, *Nachr. Ges. Wiss. Göttingen*, Heft 2, 235 (1918); S. A. Bludman, *Phys. Rev.* **100**, 372 (1955).

# Widerstandsänderung von Metallen in hohen Magnetfeldern

von **Bruno Lüthi\***

(Institut für kalorische Apparate und Kältetechnik, ETH, Zürich)

(11. I. 1960)

*Abstract:* Measurements of the transverse and of the longitudinal magnetoresistance of polycrystalline metals in pulsed magnetic fields up to 220 000 Gauss are reported. The residual resistances of the different specimens vary between 1% and 0.01%. In the longitudinal case all metals investigated, except Li and Fe, show a well pronounced saturation in high fields. In the transverse case only Al and In show saturation behaviour, Cu, Ag and Au follow exactly a linear law, while the other metals Zn, Sn, Pb, Fe, Ni and Pt have a magnetic field dependence which lies between a linear and a quadratic law. A detailed comparison with existing theories (LIFSHITZ *et al.*) is made and it is found that the results can be understood at least in a qualitative way by making use of the concept of open orbits.

## I. Einleitung

Messungen des elektrischen Widerstandes in hohen Magnetfeldern sind in verschiedener Hinsicht interessant und aufschlussreich: Schon die ersten Experimente von KAPITZA<sup>1)</sup> zeigen Resultate, die in krassem Widerspruch zu den Ergebnissen der klassischen Theorie der Transportphänomene stehen. So konnte vor allem die beobachtete lineare Feldabhängigkeit der transversalen magnetischen Widerstandsänderung nicht erklärt werden. In den letzten Jahren wurden jedoch in der Theorie wesentliche Fortschritte erzielt und das experimentelle Tatsachenmaterial weitgehend vervollständigt. Damit scheint es heute, dass sämtliche Effekte im Rahmen einer klassischen Beschreibung mit Hilfe der Boltzmann-Gleichung interpretiert werden können. Ein Hauptziel der vorliegenden Arbeit liegt darin, an Hand von neuen experimentellen Resultaten dies im einzelnen zu zeigen.

In einfacheren Fällen erhält man dann Aussagen über den topologischen Charakter der Fermifläche. Es lässt sich mit Hilfe der magnetischen Widerstandsänderung nicht die genaue Form dieser Fläche bestimmen, wie dies im Prinzip mit den bekannten Methoden (de-Haas-van-Alphen-Effekt, anomaler Skineffekt) möglich ist. Jedoch bleibt die magnetische Widerstandsänderung ein unerlässliches Hilfsmittel in speziellen Fällen, wie denen der Berührung von Fermifläche und Brillouin-zonen-Ebene, bei denen die obigen Methoden versagen.

\*) Jetzige Adresse: Institute for the Study of Metals, University of Chicago.



Solche Messungen wurden bis heute praktisch nur für den Fall eines transversalen Magnetfeldes und für polykristalline Metalle durchgeführt. Auf einige neuere Arbeiten mit Einkristallen und für den longitudinalen Widerstand werden wir im Text zurückkommen. Die meisten Messungen hat KAPITZA<sup>1)</sup> durchgeführt, mit einer ähnlichen Technik wie wir sie verwenden, allerdings nur bei Temperaturen der flüssigen Luft. Daneben gibt es Arbeiten von JUSTI *et al.*<sup>2)</sup>, BOROVIK<sup>3)</sup> und CHAMBERS<sup>4)</sup> in stationären Magnetfeldern bei Temperaturen von flüssigem Helium. Mit unserer Messmethode, die leider nur für polykristalline Metalle anwendbar ist, sind wir bei der Widerstandsänderung im Transversalfeld mit vielen Metallen in noch höhere Feldregionen als bis anhin vorgestossen. Damit kennen wir das Hochfeldverhalten dieses Effektes genügend, um ihn richtig diskutieren zu können. Überdies haben wir auch das Verhalten der Widerstandsänderung in hohen longitudinalen Magnetfeldern gründlich aufgeklärt, von der bis heute nur ein Messergebnis an Kupfer<sup>5)</sup> vorlag.

In den nächsten zwei Kapiteln werden das Experiment erklärt und die dabei auftretenden Störeffekte diskutiert. Im folgenden Abschnitt zeigen wir unsere Messergebnisse; hierauf wird ein kurzer Abriss der Theorie gegeben. Im letzten Kapitel diskutieren wir die Resultate ausführlich.

## II. Experiment

Die Experimente wurden zum grossen Teil mit einer Hochfeldapparatur durchgeführt. Einige Messungen wurden zu Kontrollzwecken auch bei stationären niederen Magnetfeldern vorgenommen.

1. *Hochfeldapparatur.* Die Methode zur Erzeugung hoher pulsformiger Magnetfelder in der hier angewendeten Art wurde von OLSEN<sup>6)</sup> entwickelt. Sie ist eingehend beschrieben bei COTTI<sup>7)</sup>, weshalb wir uns hier kurz fassen dürfen. In Fig. 1 ist die Apparatur schematisch dargestellt.

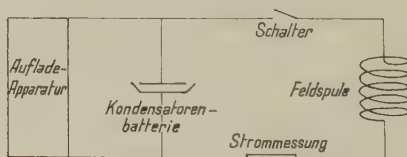


Fig. 1.

Prinzipschema der Hochfeldapparatur.

Die Kondensatorenbatterie besteht aus Elektrolyt-Kondensatoren von je 550  $\mu\text{F}$  zu 500 V. Als Entladeschalter dient ein Thyatron (TQ 2/12) oder ein Ignitron<sup>7)</sup>. Zur Verfügung standen zwei Apparaturen, eine von 1700 Joule, die andere von 5500 Joule Energie. Die erste Apparatur

wurde für Messungen mit Spulen, gekühlt durch flüssiges Helium, die zweite Apparatur für Messungen mit Spulen, gekühlt durch flüssige Luft, verwendet.

2. *Feldspulen*. Als Feldspulen dienten aus Kupferdraht gewickelte Solenoide, die mit Araldit durchtränkt und mit Glasfasern verstärkt, Beanspruchungen von elektromagnetischen Kräften bis zu Feldern von mehr als 300 kGauss standhielten. Es wurden im wesentlichen drei verschiedene Spulentypen verwendet: Eine mit flüssigem Helium gekühlte Spule I zur Messung der Widerstandsänderung im Transversalfeld, eine ebenfalls mit flüssigem Helium gekühlte Spule II zur Messung der Widerstandsänderung im Longitudinalfeld und eine mit flüssiger Luft gekühlte Spule III, bei der man ein schwanzförmiges Dewar einführen und damit Messungen sowohl bei 80° K, als auch bei 4° K ausführen kann. Spulentypus III wurde nur dort verwendet, wo man auf längere Pulsdauern angewiesen war. In Tabelle 1 sind charakteristische Daten der drei Spulentypen zusammengestellt.

**Tabelle 1**

Spulentypus	Innendurchmesser (cm)	Aussendurchmesser (cm)	Länge (cm)	Anzahl Windungen	Entladungsdauer (msec)	Maximales verwendetes Feld (kG)
I	0,5	1,8	3,6	1540	3	280
II	0,4	2,0	7,7	2100	6	220
III	1,0	5,2	8,2	3190	50	160

3. *Magnetfeldmessung*. Durch Messung des Spannungsabfalles eines niederohmigen Konstantendrahtes (kleiner Temperaturkoeffizient) in möglichst induktionsarmer Anordnung kann der Strom, der durch die Feldspule fließt, bestimmt werden. Das Magnetfeld in der Spule lässt sich dann einerseits aus der Spulengeometrie errechnen, andererseits mittels einer Induktionsspule mit Integrierglied direkt messen. Auf diese Weise kann man das Magnetfeld auf ca. 5% genau bestimmen. Die Feldinhomogenität längs der Spulennachse wurde berechnet. Wir wählten dann die Länge der zu messenden Probe so, dass die Feldinhomogenität längs der Probe weniger als 5% beträgt.

4. *Messung der magnetischen Widerstandsänderung*. Die Änderung des elektrischen Widerstandes im Magnetfeld wurde ursprünglich mit einer Wechselstrommethode gemessen<sup>8)</sup>. Dabei musste die Impedanz des Probensystems mit einer «Gegeninduktivitäts-Brücke» auskompensiert werden. Die Spannung konnte mittels eines Selektiv-Verstärkers in einem Zwei-Strahl-Oszillographen, zusammen mit dem Feldpuls, beobachtet werden.

Aus verschiedenen Gründen (s. III 2, 4), nicht zuletzt dem der Einfachheit, wurde später mit Gleichstrom gemessen. Das Prinzipschema dieser Methode ist in Fig. 2 dargestellt. Die Induktionsspannung, welche vom zeitlich veränderlichen Magnetfeld herrührt, wird durch ein ent-

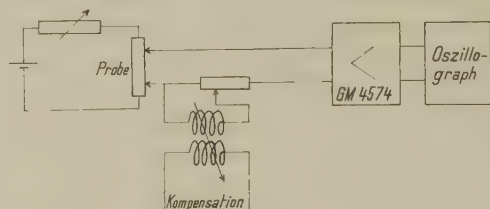


Fig. 2

Schema der Apparatur zur Messung der magnetischen Widerstandsänderung

gegengesetztes, aus dem Entladungskreis entnommenes Signal auskompensiert. Die kapazitive Kopplung zwischen Probe und Feldspule ist vernachlässigbar klein. Eine Phasenänderung des Pickupsignals, herrührend von der Kapazität der Feldspule, kann durch Verkleinern dieser Kapazität für die verwendeten Empfindlichkeiten immer vernachlässigbar klein gemacht werden. Als Vorverstärker verwenden wir den batteriegespeisten Philipsmessverstärker GM 4574. Dieser hat einen guten linearen Niederfrequenzgang, einen konstanten Verstärkungsfaktor von 100 und einen Geräuschpegel von  $\lesssim 10 \mu\text{V}$ , der im wesentlichen auch unsere Empfindlichkeit begrenzt. Der Zwei-Strahl-Oszillograph Dumont, Typ 333, mit eingebauter Kamera, ermöglicht eine gleichzeitige Aufnahme von Strompuls des Feldspulenkreises und Spannungspuls des Probenkreises.

Mit den verwendeten Reinheiten und Dimensionen (s. II 4) wird der ohmsche Widerstand der Proben  $\gtrsim \text{ca. } 20 \mu\Omega$ . Die Meßströme variierten zwischen 0,1 und 5 Ampère. Durch jeweilige Messung der Verstärkungsgrade von Vorverstärker und Oszillographen konnten die Spannungen absolut geeicht werden. Wegen den auftretenden Störeffekten (s. III) ist es sehr wichtig, den zeitlichen Verlauf der Spannungen zu kennen. Dazu ist eine Zweistrahlaufnahme (Widerstandsänderung – Zeit, Feldpuls – Zeit) geeigneter. Wenn keine Störeffekte auftreten, ist dagegen eine Einstrahlaufnahme (Widerstandsänderung – Feld) übersichtlicher. In den Experimenten wurden beide Arten von Aufnahmen verwendet. Die Messgenauigkeit bei diesen Experimenten war in ungünstigsten Fällen 10%, im allgemeinen aber ca. 5%.

5. *Proben.* Die Metalle wurden in Form von polykristallinen Drähten von 0,2–0,3 mm Durchmesser untersucht. Wir haben die folgenden Elemente untersucht: Li, Cu, Ag, Au, Zn, Al, In, Sn, Pb, Fe, Ni und Pt. Aus später noch zu erwähnenden Gründen musste grösstes Gewicht auf

eine gute Reinheit der Metalle gelegt werden. Es wurden deshalb (mit Ausnahme von Fe und Ni) nur spektroskopisch standardisierte Substanzen («Johnson Matthey» oder «Tadanac») verwendet; zudem wurden die Proben (mit Ausnahme von Li und In) vor dem Experiment einige Stunden getempert. Charakteristisch für die Reinheit des betreffenden Metalls ist das Restwiderstandsverhältnis  $R_0/R_{290^\circ}$ , das heisst das Verhältnis des elektrischen Widerstandes bei  $0^\circ$  K zu dem bei Zimmertemperatur. In Tabelle II sind diese Restwiderstandsverhältnisse für die gemessenen Proben in % angegeben.

Tabelle 2

Li	Cu	Ag	Au	Zn	Al	In	Sn	Pb	Fe	Ni	Pt
0,43	0,7	0,29	0,61	0,06	0,04	0,007	0,01	0,02	3,19	2,03	0,51
0,47	1,27	0,37	0,79	0,09	0,05	0,02	0,02	0,03	3,95	3,63	1,23
		1,36	2,78	0,11	0,57		0,04				
				0,41							

Für die Messung der transversalen magnetischen Widerstandsänderung werden die Proben bifilar auf einen runden Plexiglasstab aufgewickelt und längs der Achse in das Solenoid eingeführt. Im longitudinalen Fall wird die Probe längs der Achse auf einen Plexiglasstab montiert. Die Probenlänge beträgt damit für die transversale Anordnung ca. 15 cm und für die longitudinale ca. 5 cm. Die Potentialsonden werden in allen Fällen durch Weichlöten mit der Probe verbunden und verdreht aus der Feldspule hinausgeführt.

6. *Niederfeldapparatur.* Gewisse hochreine Substanzen wie Al, In, Sn und Pb wurden zu Kontrollzwecken auch in einem stationären Magnetfeld gemessen. Zur Verfügung stand ein Elektromagnet, der Felder bis 11 kG erzeugt. Die Spannungsmessungen führten wir mit Hilfe eines Galvanometerverstärkers<sup>9)</sup> aus. Sie bereiteten keine grösseren Schwierigkeiten; es soll deshalb nicht auf Einzelheiten eingegangen werden.

### III. Störeffekte

Bei der Messung der magnetischen Widerstandsänderung in pulsierten Feldern treten verschiedene Störeffekte auf. Es sind dies die folgenden:

1. Mechanische Schwingungen der Probe infolge der Biot-Savart-Kräfte.
2. Wirbelstromaufheizung.
3. Skin-Effekt.
4. Size-Effekt.

1. *Mechanische Schwingungen.* Ein stromdurchflossener Leiter erfährt im Magnetfeld eine Biot-Savart-Kraft, die ihn aus seiner Ruhelage bringen und dadurch Spannungen induzieren kann. Bei der ursprünglichen Wechselstrommethode führte der Draht periodische Schwingungen aus, die grosse Induktionsspannungen hervorriefen. Man kann diese Störungen weitgehend verhindern, indem man die Probe sorgfältig in Araldit



oder Prestolith einbettet. Allerdings wird dadurch, infolge mechanischer Spannungen, der Restwiderstand der Probe etwas erhöht. Zusätzlich treten durch Erschütterung des ganzen Feldspulensystems während der Kondensatorentladung weitere Induktionsspannungen auf. Diese können durch eine feste mechanische Bindung des Probehalters an die Feldspule verhindert werden. Mit all diesen Vorkehrungen blieb der Störeffekt der mechanischen Schwingungen von der Grössenordnung der Rauschspannung des Verstärkers.

2. *Wirbelstromaufheizung.* Der grösste aller Störeffekte ist die Joulesche Erwärmung, hervorgerufen durch die durch ein pulsiertes Magnetfeld induzierten Wirbelströme. Während die durch diese Wirbelströme entstehenden Feldinhomogenitäten noch vernachlässigbar klein sein können (für unseren Fall  $< 1\%$ ), erzeugen sie sehr grosse Aufheizeffekte. Diese haben in vielen Fällen dieselbe Grössenordnung wie die magnetische Widerstandsänderung.

Die Joulesche Leistung pro Volumeneinheit  $Q$  ist für den longitudinalen und den transversalen Fall von der gleichen Grössenordnung. Durch einfache Rechnung erhält man für  $Q$  eine Proportionalität zur Leitfähigkeit  $\sigma$  und eine quadratische Abhängigkeit vom Probenradius  $a$  und von der Magnetfeldänderung  $\dot{H}$ , das heisst  $Q \sim \sigma a^2 \dot{H}^2$ . Da eine grosse Leitfähigkeit sehr erwünscht ist, muss man, um die Heizleistung  $Q$  zu vermindern, zu möglichst kleinen Probendurchmessern und möglichst langen Feldpulsen übergehen.

Diese Wirbelstromaufheizung wurde in einer grossen Anzahl von Fällen beobachtet. So erwies sich zum Beispiel der Wiederanstieg der magnetischen Widerstandsänderung von Al in hohen Feldern als ein reiner Wirbelstromaufheizeffekt<sup>10)</sup>\*). Experimentell lässt sich der Aufheizeffekt für Metalle mit kleinem Grüneisen- $\theta$  sehr schön nachweisen, indem unmittelbar nach dem Feldpuls der elektrische Widerstand grösser ist als vor dem Feldpuls. Wegen der komplizierten Temperaturabhängigkeit des elektrischen Widerstandes und der spezifischen Wärme ist eine rechnerische Korrektur dieses Aufheizeffektes zu ungenau. Ein besserer thermischer Kontakt zwischen Probe und Heliumbad, vor allem Messungen unterhalb des  $\lambda$ -Punktes von flüssigem Helium, vermindert jedoch diesen Effekt beträchtlich.

3. *Skin-Effekt.* Der Skin-Effekt ist bei unseren reinsten Proben verhältnismässig gross. So erhält man zum Beispiel für Cu mit einem Wechselstrom von 1 kHz und einem Restwiderstandsverhältnis von 0,1% eine Eindringtiefe von nur 0,06 mm. Dies ist der Hauptgrund, der zur Aufgabe der ursprünglichen Wechselstrommethode führte.

\*) Herrn Dr. D. SHOENBERG danke ich für die private Mitteilung seiner Messergebnisse der magnetischen Widerstandsänderung von Al, sowie für seine Unterstützung bei der Aufklärung dieses Störeffektes.



4. *Size-Effekt*. Falls die freie Weglänge der Elektronen mit den Probedimensionen vergleichbar wird, erfolgt infolge der zusätzlichen Wandstreuung eine Erhöhung des elektrischen Widerstandes. Da dieser Effekt auch eine Magnetfeldabhängigkeit zeigt<sup>11)12)</sup>, kann dadurch die magnetische Widerstandsänderung verfälscht werden. In hohen Feldern verschwindet er jedoch wieder, weil der Bahnradius der Elektronen umgekehrt proportional zum Magnetfeld ist; allerdings wird bei einer Darstellung in Funktion von  $\Delta R/R_0$  der Widerstand ohne Magnetfeld  $R_0$  verfälscht bleiben, weshalb  $R_0$  nachträglich auf den Widerstand eines dicken Drahtes umgerechnet werden muss.

5. *Messung der longitudinalen Widerstandsänderung*. Bei der Messung der longitudinalen magnetischen Widerstandsänderung tritt erschwerend der Umstand hinzu, dass für einige Metalle die transversale Widerstandsänderung um einige Zehnerpotenzen grösser sein kann als die longitudinale<sup>13)</sup>. Dies bedeutet, dass man die Probe äusserst genau parallel zum Feld richten muss, will man nicht eine grosse transversale Komponente mitmessen.

Der Vollständigkeit halber sei schliesslich noch erwähnt, dass bei unserer verwendeten Probenanordnung (Drahtdurchmesser  $\approx 0,3$  mm, Distanz zwischen den Potentialsonden  $\approx$  einige cm) keine Sondeneffekte<sup>14)</sup>, die von einer inhomogenen Stromverteilung herrühren, auftreten können.

#### IV. Resultate

In Fig. 3, 4 und 5 sind die Resultate der transversalen und der longitudinalen magnetischen Widerstandsänderung bei der Temperatur der flüssigen Luft und des flüssigen Heliums in einem sogenannten Justikohler-Diagramm gesamthaft dargestellt. Dabei bedeuten  $\Delta R = R_H - R_T$  die Änderung des elektrischen Widerstandes im Magnetfeld,  $R_T$  der Widerstand ohne Feld bei der Temperatur  $T$  und  $R_\theta$  der Widerstand bei der Debye-Temperatur  $\theta$ .

Die Darstellung der Resultate in Funktion von  $H/R_T$  ist wegen der sogenannten Kohler-Regel angebracht (s. VI 1); die Einführung des Verhältnisses  $R_T/R_\theta$  erfolgt, um die verschiedenen Resultate normiert vergleichen zu können. Ein Teil dieser Resultate wurde schon an anderer Stelle in Kurzberichten publiziert<sup>13)15)</sup>. Die Messungen bei 80° K und bei 4° K überlappen sich für unsere Feldregionen nicht, der untere Ast der Kurven entspricht jeweils der Messung bei 80° K, der obere derjenigen bei 4° K.

Im longitudinalen Fall zeigen folgende Metalle ausgesprochenen Sättigungscharakter: Ag, Au, Zn, Al, In, Sn, Pb, Ni, Pt, ebenfalls auch Cu<sup>5)</sup>. Hingegen zeigen Li und Fe bis zu den bis heute gemessenen Feldern eine lineare Feldabhängigkeit.

Im transversalen Fall variiert die Feldabhängigkeit der magnetischen Widerstandsänderung in hohen Feldern für die verschiedenen Metalle sehr stark: Die drei einwertigen Metalle Cu, Ag, Au zeigen genau lineares Verhalten, einzig an Al und In beobachtet man ausgeprägte Sättigung.

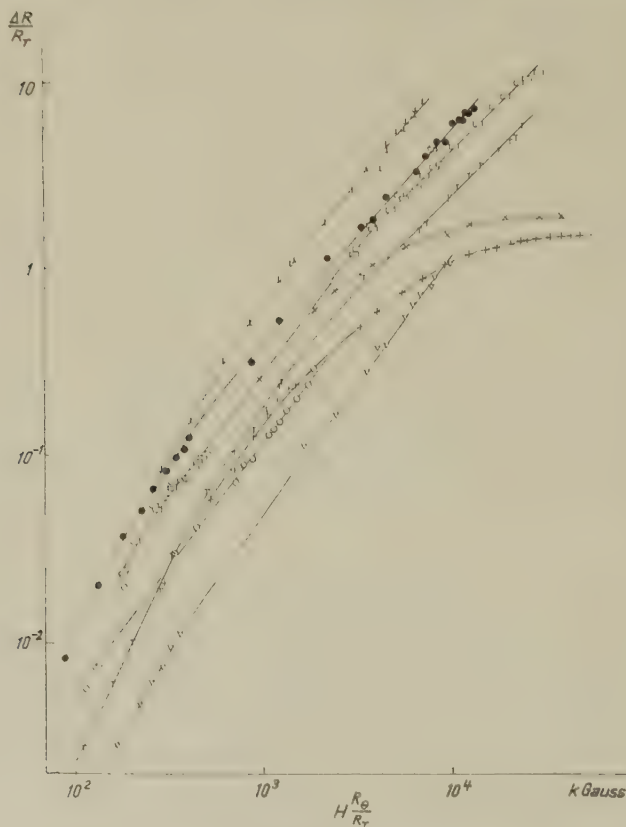


Fig. 3

Transversale magnetische Widerstandsänderung

$\top$  Cu (310)     $\square$  Ag (220)     $\bullet$  Au (320)     $\times$  In (100)  
 $+$  Al (410)     $\circ$  Ni (410)     $\nabla$  Pt (240)     $\perp$  Fe (355)

Die Zahlen in den Klammern geben die Debye-Temperatur des betreffenden Metalles an

Es soll nochmals darauf hingewiesen werden, dass eine früher publizierte Messung<sup>10)</sup> eines Wiederanstieges der Widerstandsänderung von Al auf einen Störeffekt zurückzuführen ist (s. III 3).

Die übrigen Metalle geben für die Feldabhängigkeit in hohen Feldern Exponenten in  $H$ , die zwischen 1 und 2 liegen. In Tabelle 3 sind die

Exponenten der Gleichung der transversalen Widerstandsänderung für hohe Felder dargestellt.

Tabelle 3

Cu	Ag	Au	Zn	Al	In	Sn	Pb	Fe	Ni	Pt
1	1	1	1,7	0,1	0	1,8	1,5	1,2	1,2	1,3

Für gewisse Metalle kamen schon andere Autoren<sup>2)3)4)</sup> mit reineren Proben und stationären Feldern in die Hochfeldregion. Mit Ausnahme von Au und Pb liegen jedoch ihre Messungen bei zum Teil doch beträchtlich niedrigeren Werten von  $H R_{\theta}/R_T$ , so dass wir uns für die Diskussion im wesentlichen nur auf unsere Resultate berufen müssen.

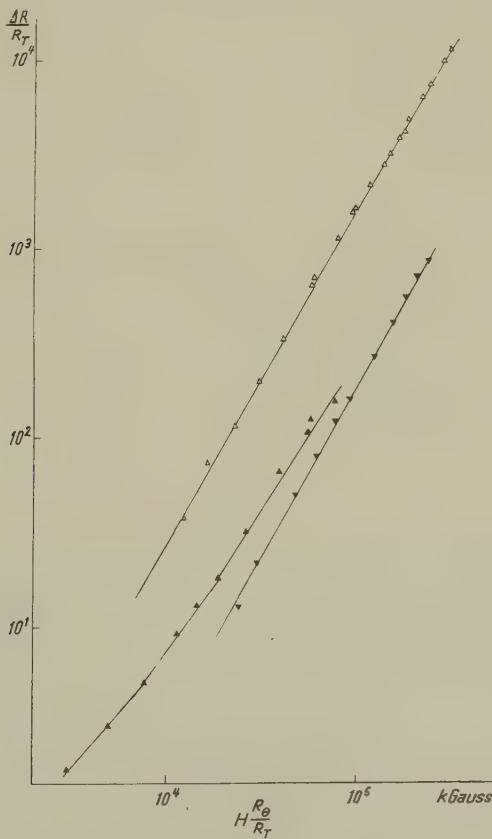


Fig. 4  
Transversale magnetische Widerstandsänderung  
 $\Delta$  Zn (240)       $\nabla$  Sn (160)       $\blacktriangle$  Pb (90)

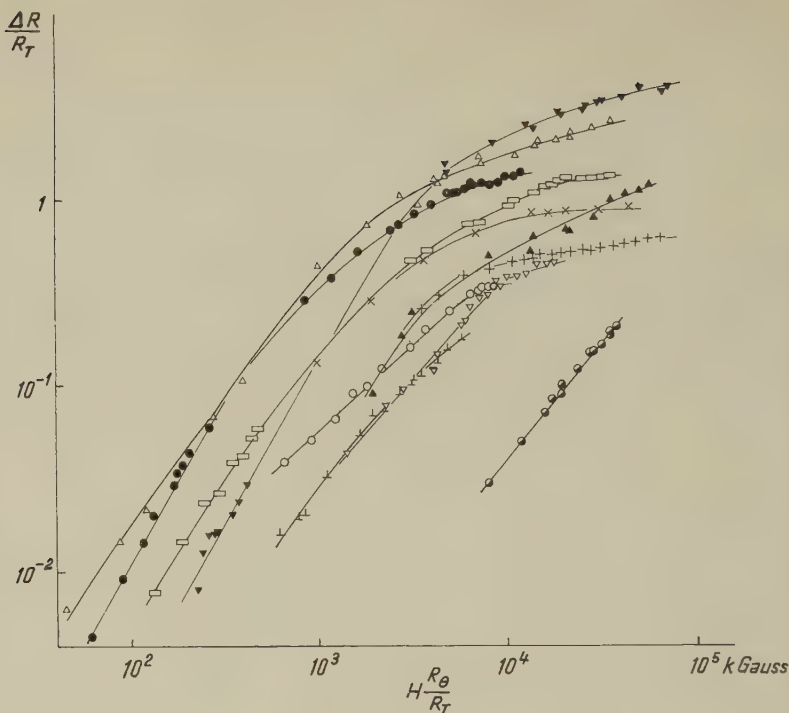


Fig. 5

Longitudinale magnetische Widerstandsänderung

● Li (430)	□ Ag (220)	● Au (320)
+ Al (410)	× In (100)	Δ Zn (240)
▼ Sn (160)	▲ Pb (90)	⊥ Fe (355)
○ Ni (410)	▽ Pt (240)	

### V. Theorie

Ausgehend von der Boltzmann-Gleichung wird hier die Theorie der magnetischen Widerstandsänderung in hohen Feldern kurz skizziert. Eine solche Behandlung des Problems gibt zu verschiedenen ernsthaften Kritiken Anlass. Deshalb soll nach der Darlegung der Theorie in einem besonderen Abschnitt und bei der Diskussion der Resultate speziell auf diese Kritikpunkte eingegangen werden.

1. *Lösung der Boltzmann-Gleichung für grosse Magnetfelder.* Die Lösung der Boltzmann-Gleichung für grosse Magnetfelder wurde schon von verschiedenen Autoren<sup>4)16)17)</sup> angegeben. Die eleganteste und allgemeinste Darstellung ist wohl die von LIFSHITZ *et al.*<sup>17)</sup>.

Ein Kristallelektron wird bei Anwesenheit eines Magnetfeldes  $\mathbf{H} = (0, 0, H)$  an Stelle des Wellenzahlvektors  $\mathbf{k}$  zweckmässiger durch die drei Parameter  $E$  (Energie),  $k_z$  (Wellenzahlvektorkomponente in der

Magnetfeldrichtung) und  $\varphi$  (Phasenvariable, die den Ort des Elektrons auf seiner Bahn im  $\mathbf{k}$ -Raum bestimmt) beschrieben. Die Boltzmann-Gleichung wird in diesen Koordinaten zu:

$$-\frac{\partial \chi}{\partial \varphi} + \gamma W(\chi) = \gamma \mathbf{v} \frac{\partial f_0}{\partial E}$$

wobei  $\chi$  gemäss dem üblichen Ansatz für die Verteilungsfunktion  $f = f_0 - e \tau (\chi \cdot \boldsymbol{\varepsilon})$  die Abweichung von  $f$  von der stationären Verteilungsfunktion  $f_0$  darstellt. Ferner ist  $\tau$  die mittlere Stosszeit,  $\boldsymbol{\varepsilon}$  der elektrische Feldvektor,  $W$  der lineare Stossoperator,  $\mathbf{v} = 1/\hbar \text{ grad}_{\mathbf{k}} E$  die Geschwindigkeit des Elektrons.  $\gamma = (1/\omega \tau)$  stellt ein Mass für die effektive Stärke des Magnetfeldes dar; die Larmorfrequenz  $\omega$  ist für eine gegebene Bahn konstant und proportional zum Magnetfeld. Ein Elektron vollführt auf seiner Bahn um so mehr Umläufe ohne gestreut zu werden, je grösser  $\omega \tau$  ist. Man entwickelt deshalb für hohe Felder  $\chi$  nach Potenzen von  $\gamma$ . Die Rechnung zeigt, dass im wesentlichen zwei Faktoren das Verhalten von  $\chi$  (und damit auch der Widerstandstensorkomponenten) in hohen Feldern bestimmen: 1. Die Bahn des Elektrons im  $\mathbf{k}$ -Raum ist geschlossen oder offen. Im Falle von offenen Bahnen wird  $\omega = 0$ , das heisst die Entwicklung nach Potenzen von  $\gamma$  ist nicht mehr gestattet. 2. Der Mittelwert der Geschwindigkeitskomponente  $v_i$  des Elektrons längs einer Bahn verschwindet oder verschwindet nicht. Im letzteren Fall beginnen die Komponenten des Leitfähigkeitstensors mit der nullten Potenz in  $\gamma$ .

2. *Fall geschlossener Bahnen.* Im Falle geschlossener Bahnen ergibt die Rechnung für den Leitfähigkeits- und den Widerstandstensor in hohen Magnetfeldern<sup>17)</sup>:

$$(\sigma_{ij}) = \begin{pmatrix} a_{xx} \gamma^2 & a_{xy} \gamma & a_{xz} \gamma \\ a_{yx} \gamma & a_{yy} \gamma^2 & a_{yz} \gamma \\ a_{zx} \gamma & a_{zy} \gamma & a_{zz} \end{pmatrix} \quad (\varrho_{ij}) = \begin{pmatrix} b_{xx} & b_{xy} \gamma^{-1} & b_{xz} \\ b_{yx} \gamma^{-1} & b_{yy} & b_{yz} \\ b_{zx} & b_{zy} & b_{zz} \end{pmatrix}$$

Dabei stellen  $a_{ij}$  und  $b_{ij}$  Konstanten dar, die in erster Näherung unabhängig von  $\gamma$  sind.

Man kann diese Feldabhängigkeit wie folgt verstehen: Die Mittelwerte der Geschwindigkeitskomponenten senkrecht zum Magnetfeld  $\bar{v}_x$  und  $\bar{v}_y$  verschwinden für den Fall geschlossener Bahnen; jedoch nicht  $\bar{v}_z$ . Deshalb gilt  $\sigma_{xx} \sim \gamma^2$ ,  $\sigma_{yy} \sim \gamma^2$ , aber  $\sigma_{zz} \sim \gamma^0$ . Die Widerstandskomponenten  $\varrho_{xx}$  und  $\varrho_{yy}$  werden jedoch nicht proportional zu  $\gamma^{-2}$ , sondern zeigen wegen dem entstehenden Hallfeld eine Sättigung. Die Hallkonstante  $R$  wird in hohen Feldern zu  $R = 1/e c (n_+ - n_-)$ , wobei  $n_+$  die Zahl der Löcher pro Atom und  $n_-$  die Zahl der Elektronen pro Atom bedeutet. Die Hallkonstante ist somit unabhängig von der Richtung des Magnetfeldes zu den Kristallachsen und auch unabhängig vom Stossoperator.

Falls die Zahl  $n_+$  der Löcher gleich der Zahl  $n_-$  der Elektronen ist, wird das Hallfeld unabhängig vom Magnetfeld, die transversalen Wider-



standskomponenten deshalb proportional zu  $\gamma^{-2}$ , während  $\varrho_{zz}$  weiterhin eine Sättigung zeigt.

Aus diesen Betrachtungen folgt, dass man die Metalle in zwei Gruppen einteilen kann, wenn die Fermifläche nur geschlossene Bahnen zulässt. Die eine Gruppe, für die  $n_+ \neq n_-$  gilt, zeigt sowohl im transversalen als auch im longitudinalen Fall eine Sättigung der magnetischen Widerstandsänderung, in der zweiten Gruppe, mit  $n_+ = n_-$ , steigt die transversale Widerstandsänderung quadratisch mit dem Magnetfelde an.

3. *Fall offener Bahnen.* Sobald die Fermifläche die Brillouinzone berührt oder sogar stark überlappt, können für gewisse Magnetfeldrichtungen und bestimmte Werte für  $k_z$  neben geschlossenen auch offene Bahnen auftreten. Offene Bahnen erstrecken sich kontinuierlich durch den  $k$ -Raum, während geschlossene Bahnen sich nach Durchlaufen von einer oder mehreren Zonen wieder schliessen (s. Beispiel in Fig. 6). Offene

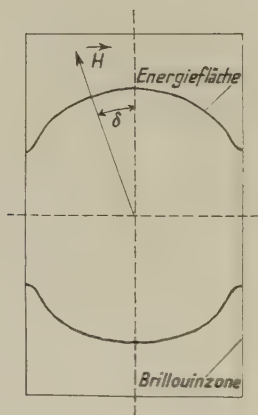


Fig. 6

Modell einer Energiefläche vom Typ des gewellten Zylinders

Bahnen bewirken, dass die Komponenten des Leitfähigkeits- und des Widerstandstensors in hohen Feldern eine vom Falle geschlossener Bahnen ganz verschiedene Feldabhängigkeit zeigen. Rechnungen mit offenen Bahnen wurden bis heute von ZIMAN<sup>18)</sup> für den speziellen Fall einer zylinderförmigen Fermifläche und von LIFSHITZ und PESCHANSKII<sup>19)</sup> für allgemeinere Typen von Energieflächen durchgeführt. Wir untersuchen hier den Fall des gewellten Zylinders<sup>19)</sup> (s. Fig. 6)

Für grosse Winkel  $\delta$  können nur geschlossene Bahnen auftreten; die Leitfähigkeits- und Widerstandskomponenten ergeben dann dasselbe asymptotische Verhalten wie bei geschlossenen Energieflächen. Wenn sich das Magnetfeld senkrecht zur Zylinderachse einstellt, das heisst, wenn

gilt  $\delta \ll 1$ , werden die Bahnen ausgedehnter. Für solche Bahnen wird die Umlauffrequenz  $\omega \approx \delta \omega_0$ , wobei  $\omega_0$  die Larmorfrequenz für geschlossene Bahnen bedeutet. Von den Geschwindigkeitskomponenten wird jetzt auch der Mittelwert von derjenigen von  $v_y$  von Null verschieden ( $y$ -Richtung senkrecht zur Magnetfeldachse und zur Zylinderachse). Für die Leitfähigkeitskomponenten folgt

$$\sigma_{xx} \sim \gamma^2, \sigma_{zz} \sim \gamma^0, \sigma_{xy} \sim \gamma$$

aber

$$\sigma_{yy} \sim \frac{a_1 \gamma^2}{\delta^2 + a_2 \gamma^2}$$

Dreht man das Koordinatensystem so um die  $z$ -Achse, dass die Stromrichtung mit der neuen  $x$ -Richtung zusammenfällt, so wird das Hallfeld  $\varepsilon_y$  zu

$$\frac{\varepsilon_y}{\varepsilon_x} = \frac{b_1 \delta^2 + b_2 \gamma}{\gamma}$$

und die transversale magnetische Widerstandskomponente  $\varrho_{\perp}$  zu

$$\varrho_{\perp} = \frac{c_1}{\delta^2 + c_2 \gamma^2} + c_3$$

Die longitudinale Komponente  $\varrho_{II}$  ist weiterhin unabhängig von  $\gamma$  ( $a_i, b_i, c_i$  sind Konstanten, die in erster Näherung von  $\gamma$  und  $\delta$  unabhängig sind). Für  $\delta = 0$  steigt somit  $\varrho_{\perp}$  quadratisch mit dem Felde an,  $\varepsilon_y/\varepsilon_x$  ist in diesem Falle feldunabhängig. Alle diese Gesetzmässigkeiten bleiben bei Vorhandensein von weiteren geschlossenen und offenen Bahnen bestehen, solange nicht für dieselbe Magnetfeldrichtung offene Bahnen auch in anderen Richtungen existieren.

4. *Zur Anwendbarkeit der Boltzmann-Gleichung.* Wir untersuchen hier, inwiefern die Voraussetzungen der Anwendbarkeit der Boltzmann-Gleichung für den Fall hoher Magnetfelder erfüllt sind:

Um den Begriff des Wellenpaketes anwenden zu können, muss die Wellenpaketausdehnung viel kleiner als die mittlere freie Weglänge sein, das heisst es muss gelten  $\hbar/\tau \ll \zeta$  ( $\tau$  mittlere Stosszeit,  $\zeta$  Fermienergie). Diese Bedingung ist für Metalle immer erfüllt, nicht aber für Legierungen.

Damit man aber auch von einem Teilchen auf einer im Magnetfeld gekrümmten Bahn sprechen kann, muss verlangt werden, dass die Wellenpaketausdehnung viel kleiner als der Bahnradius ist. Diese Voraussetzung lässt sich umformen zu  $\mu H \ll \zeta$  ( $\mu$  = magnetisches Moment des Kristallelektrons); sie ist bei unseren Feldern von etwa  $10^5$  Gauss für Metalle immer noch gut erfüllt. Die sogenannte Quanten Limite, bei der sich die Elektronen im wesentlichen im tiefsten Oszillatorniveau befinden, wird erst bei Feldern von ca.  $10^9$  Gauss erreicht.

Mit Hilfe des Ehrenfest-Theorems lässt sich zeigen, dass die Bewegung eines Wellenpaketes auch bei Anwesenheit eines elektromagnetischen Feldes der Bewegung eines klassischen Teilchens äquivalent ist<sup>20)</sup>. Dass dies sogar für ein Kristallelektron gilt, wurde von LUTTINGER<sup>21)</sup> nachgewiesen. Es stellt sich dabei heraus, dass keine Bedingung der Art  $\omega\tau \ll 1$  auftritt; diese beruht vielmehr auf einer unkorrekten Abschätzung<sup>22)</sup> (siehe dazu auch CHAMBERS<sup>4)</sup>).

Für die periodische Bewegung des Wellenpaketes im Magnetfeld lässt sich korrespondenzmässig die Bohr-Sommerfeldsche Quantisierungsregel anwenden, die die Oszillatorniveaus  $(n + \theta) \mu H$  beschreibt ( $0 < \theta < 1$ ). Diese Methode ist für  $n \gg 1$  gültig (in unserem Falle ist  $n \approx 10^3$ ). Sie ist nicht mehr anwendbar, wenn auch die Wellenpaketvorstellung nicht mehr richtig ist: das heisst im Falle der Quantenlimite. LIFSHITZ<sup>23)</sup> entwickelte auf dieser Grundlage eine quantenmechanische Theorie der magnetischen Widerstandsänderung. Er zeigte, dass die auftretenden Oszillationen in der magnetischen Widerstandsänderung, im Bereiche, wo  $\mu H \gtrsim k T$  gilt (de Haas-Shubnikov-Effekt), klein sind, verglichen mit der oben diskutierten gewöhnlichen magnetischen Widerstandsänderung. Dies ist in Übereinstimmung mit den experimentellen Resultaten<sup>24)</sup>.

## VI. Diskussion

Ein Vergleich zwischen unseren experimentellen Resultaten und den Ergebnissen der unter V skizzierten Theorie ergibt folgendes:

Bei der longitudinalen magnetischen Widerstandsänderung zeigt sich eine gute Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment. Ausser Li und Fe sättigt sich der Widerstand in einem Longitudinalfeld bei allen bis heute gemessenen Metallen (Fig. 5). Andererseits ergeben auch alle besprochenen Energieflächenmodelle eine Sättigung.

Nach der Theorie muss sich die transversale magnetische Widerstandsänderung in hohen Magnetfeldern entweder sättigen oder quadratisch vom Felde abhängen. Unsere Messungen zeigen jedoch eine viel kompliziertere Feldabhängigkeit (s. Tab. 3).

Wir untersuchen nun die Gründe, die möglicherweise diese Diskrepanz hervorrufen. Nach den Ausführungen in V 4 dürfte die dort dargelegte Theorie in ihren Grundzügen richtig sein. Die folgenden Punkte müssen aber noch eingehender besprochen werden: 1. Die Gültigkeit der Kohler-Regel. 2. Die Annahme einer magnetfeldunabhängigen Stosszeit. 3. Der Einfluss der verschiedenen Orientierungen der Mikrokristalle im polykristallinen Metall.

1. *Kohler-Regel.* Nach der sogenannten Kohler-Regel<sup>25)</sup> ist die magnetische Widerstandsänderung für ein Metall einzig eine Funktion von  $H/R_0$ , wobei  $R_0$  den Widerstand ohne Magnetfeld bedeutet. Damit lassen sich Messungen bei verschiedenen Temperaturen und von verschiedenen reinen

Metallen als Funktion von  $H/R_0$  allein darstellen. Aus der Boltzmann-Gleichung ist sofort ersichtlich, dass diese Regel bei Annahme einer isotropen Relaxationszeit erfüllt ist. Dies gilt auch für den Fall hoher Magnetfelder, wo alle Grössen nach  $1/\omega \tau$  entwickelt werden, also nur von  $\omega \tau$  abhängen. Unsere Messresultate in Fig. 3, 4, 5 zeigen, dass innerhalb der Messgenauigkeit diese Regel gültig zu sein scheint.

Eine Ausnahme bildet Li (s. Fig. 7). Hier ergibt die Kohler-Darstellung für Messungen bei 80° K und 4° K zwei sich nicht deckende Kurven.

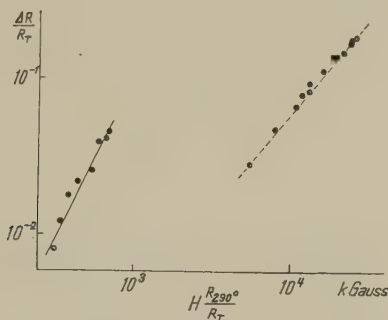


Fig. 7

Longitudinale magnetische Widerstandsänderung von Li

— Messungen bei 80° K

--- Messungen bei 4° K

Dieses Verhalten ist sehr wahrscheinlich auf die bei etwa 75° K stattfindende Phasentransformation zurückzuführen<sup>26)27)</sup>, bei der sich etwa 50% der kubisch raumzentrierten Struktur in die hexagonale Struktur umwandelt. Nach unseren Messungen muss dann die Fermifläche der hexagonalen Struktur viel sphärischer sein, als diejenige der Hochtemperatur-Struktur, verkleinert sich doch  $\Delta R/R_T$  bei gleichem  $H R_{290^\circ}/R_T$  beim Übergang von 80° K zu 4° K beträchtlich.

Eine weitere Verletzung der Kohler-Regel kann beim Size-Effekt auftreten. Wenn sich jedoch dieser nur in einer Änderung von  $R_0$  bemerkbar macht, nicht aber in  $\Delta R$ , kann sie durch Umrechnen von  $R_0$  auf den Wert eines dicken Drahtes leicht behoben werden, wie schon unter III 5 ausgeführt wurde.

Eine möglicherweise starke Verletzung der Kohler-Regel kann in Fällen, wo der Streumechanismus sehr anisotrop ist, auftreten. Offenbar wird aber dieser Effekt bei polykristallinem Material infolge der Mittelung über alle Raumrichtungen praktisch vollständig ausgeschmiert.

Für isotrope Stosszeiten sollte nach der Theorie die Kohler-Regel für alle Komponenten des Widerstandstensors gültig sein, im Speziellen auch für die Hallkonstante  $R$ . Wegen der grossen Streuung in den experimen-



tell bestimmten Hallkoeffizienten  $R$  ist es jedoch schwierig, die Kohler-Regel auch für  $R$  nachzuprüfen. Für Al scheint sie gut erfüllt zu sein<sup>28)</sup>.

Zusammenfassend darf man sagen, dass die Kohler-Regel innerhalb der Grenzen ihrer Anwendbarkeit durch das Experiment bestätigt zu sein scheint.

2. *Feldabhängigkeit der Stosszeit.* In der unter V dargelegten Theorie der magnetischen Widerstandsänderung wurde das in der Boltzmann-Gleichung auftretende Stossintegral als von äusseren Feldern unabhängig angenommen. Ist diese Annahme gerechtfertigt? Theoretische Untersuchungen<sup>29)30)</sup>, allerdings mit einschränkenden Voraussetzungen, ergeben für die Relaxationszeit  $\tau_H$  in Anwesenheit eines zum Strome senkrechten Magnetfeldes folgenden Ausdruck:

$$\frac{1}{\tau_H} = \frac{1}{\tau_0} \left( 1 + \alpha \frac{\mu H}{\zeta} + \text{oszillatorische Glieder} \right)$$

( $\tau_0$  = Relaxationszeit ohne Feld,  $\alpha$  = Konstante, nur abhängig vom Streumechanismus,  $\alpha \approx 1$ ). Diese Form gilt sowohl für die Elektron-Phonon-Streuung, wie auch für die Streuung von Elektronen an Kristalldefekten. Auch für unsere höchsten Felder gilt immer noch  $\mu H \ll \zeta$ . Es ist deshalb aus rein theoretischen Gründen sehr unwahrscheinlich, dass die Feldabhängigkeit des Stossintegrales mitberücksichtigt werden muss.

Zur Prüfung dieser Frage wurde folgendes Experiment durchgeführt: Man misst in der Hochfeldregion (das heisst, wo  $\omega \tau \gg 1$  gilt) die magnetische Widerstandsänderung in Fällen von reiner Elektron-Phonon- und reiner Elektron-Kristalldefekt-Streuung. Falls die Feldabhängigkeit des Streumechanismus einen Einfluss hat, sollte dies in einer verschiedenen Feldabhängigkeit der magnetischen Widerstandsänderung für die beiden Fälle, oder mindestens in einer starken Verletzung der Kohler-Regel zum Ausdruck kommen. Fig. 8 zeigt Messungen der transversalen magnetischen Widerstandsänderung von Cu, Ag und Au bei 80° K und 4° K, also in Bereichen mit praktisch reiner Elektron-Phonon- und reiner Restwiderstands-Streuung. Mit Messungen bei 80° K erreicht man mit unseren Feldern noch nicht den eigentlichen Hochfeldbereich, jedoch ist die Feldabhängigkeit schon dieselbe wie für die Messungen bei 4° K. Ausserdem ist die Kohler-Regel innerhalb der Messgenauigkeit gut erfüllt. Man darf also sagen, dass auch die experimentellen Resultate keinerlei Hinweise für eine feldabhängige Stosszeit geben.

3. *Widerstandsänderung eines polykristallinen Metalls.* Die unter V skizzierte Theorie gilt nur für Einkristalle. Wie in V 3 gezeigt wurde, kann wegen des Auftretens von offenen Bahnen die magnetische Widerstandsänderung sehr empfindlich von der Richtung des Magnetfeldes zu den Kristallachsen abhängen. Für ein polykristallines Metall hat man bei gegebenem äusseren Magnetfeld eine Mittelung über alle möglichen



Kristallorientierungen auszuführen. Es ist jedoch schwierig zu entscheiden, wie man zu mitteln hat. Bis heute ist es noch nicht gelungen, ein richtiges Mittelungsverfahren anzugeben. Man muss bedenken, dass der Leitfähigkeitstensor eines Einkristalles bei Anwesenheit eines Magnet-



Fig. 8

Transversale magnetische Widerstandsänderung der einwertigen Metalle

△ Cu    □ Ag    ● Au

— Messungen bei 80° K

--- Messungen bei 4° K

Die Pfeile ↓ geben die Stelle  $\omega\tau = 1$  an

feldes nicht symmetrisch ist; zudem sind die Tensorkomponenten komplizierte Funktionen des Winkels zwischen der Magnetfeldrichtung und den Kristallachsen. Deshalb untersuchen wir im folgenden für gewisse Energieflächenstrukturen verschiedene Arten von Mittelungen, die nicht weiter begründet werden können. Wenn diese Mittelungsprozesse auch im besten Falle nur eine Approximation des wirklichen Verhaltens eines polykristallinen Metalles geben, kann trotzdem wenigstens abgeschätzt werden, wie stark sich die Widerstandsänderung eines polykristallinen Metalles von der eines Einkristalles unterscheidet.

a) Energieflächen, bei denen nur geschlossene Bahnen auftreten: Falls  $n_+ \neq n_-$  gilt, das heisst, wenn die Anzahl Löcher pro Atom verschieden

ist von der Anzahl Elektronen pro Atom und wenn zudem für alle Magnetfeldrichtungen nur geschlossene Bahnen möglich sind, dann sättigen sich im Einkristall die Transversalkomponenten des Widerstandstensors in hohen Magnetfeldern für alle Feldrichtungen. Eine Mittelung über alle Kristallorientierungen für das polykristalline Metall muss dann unabhängig vom Mittelungsverfahren ebenfalls eine Sättigung der magnetischen Widerstandsänderung ergeben. Dieser Fall dürfte für die Metalle Al und In zutreffen, deren Widerstand in hohen Feldern ausgeprägte Sättigung zeigt. Für Al ist dies in Übereinstimmung mit anderen experimentellen Daten und dem heute als richtig anerkannten Modell der Fermifläche<sup>28)</sup>.

Falls  $n_+ = n_-$  gilt und weiterhin nur geschlossene Bahnen auftreten, hängt die transversale Widerstandskomponente für einen Einkristall quadratisch vom Magnetfeld ab. Sowohl die Mittelung des Leitfähigkeits- als auch des Widerstandstensors ergibt ebenfalls eine quadratische Feldabhängigkeit. Nach Tabelle 3 befolgt keines unserer Metalle diese Gesetzmässigkeit. Sie wäre aber zu erwarten für Metalle, deren Energiebänder nur sehr wenig überlappen und die ohne eine solche Überlappung zu Isolatoren würden. Nach Messungen von JUSTI *et al.*<sup>2)</sup> könnten die Metalle Cd und Be sich so verhalten.

b) Energieflächen vom Typus des gewellten Zylinders: Diesen Fall haben wir schon in V 3 untersucht. Das Besondere dieser Energiefläche ist das singuläre Verhalten der transversalen magnetischen Widerstandsänderung für Feldrichtungen senkrecht zur Zylinderachse. Mittelt man den Leitfähigkeitstensor<sup>18)</sup> oder den Widerstandstensor<sup>19)</sup> über alle Raumrichtungen, so erhält man für die transversale magnetische Widerstandsänderung eine lineare Feldabhängigkeit. Dies rührt davon her (s. V 3), dass der Winkelbereich, in welchem der Widerstand quadratisch vom Felde abhängt, umgekehrt proportional zum Feld kleiner wird.

Man könnte versuchen, damit die transversale magnetische Widerstandsänderung der einwertigen Metalle Cu, Ag und Au zu erklären. Dazu muss die Fermifläche die Brillouinzone in der (111)-Richtung berühren oder überlappen. Messungen des anomalen Skin-Effektes haben für Cu eine solche Fermifläche wahrscheinlich gemacht<sup>31)</sup>. Nach kürzlich erfolgten Messungen der transversalen magnetischen Widerstandsänderung von Au-Einkristallen in hohen stationären Feldern<sup>32)</sup> muss auch die Fermifläche von Au dasselbe Verhalten zeigen. Die Mittelung der Komponenten des Widerstandstensors entspricht experimentell dem Fall, bei dem die Mikrokristallgrösse von der Grössenordnung des Drahtdurchmessers ist. Bei unseren Drähten sind die Mikrokristalldurchmesser etwa 0,04 mm, der Drahtdurchmesser 0,2 mm, diese Bedingung ist also nicht ganz realisiert.

In den obenstehenden Ausführungen hat man die Durchdringung der vier gewellten Zylinder, die die Fermifläche eines einwertigen kubisch flächenzentrierten Metalles bestimmen, vernachlässigt. Berücksichtigt man sie, dann existiert ein endliches Raumwinkelgebiet von Magnetfeldrichtungen, für die weitere offene Bahnen existieren. Diese haben wiederum eine quadratische Feldabhängigkeit der transversalen magnetischen Widerstandskomponenten zur Folge<sup>19)</sup>. Die Mittelungen des Leitfähigkeits- und des Widerstandstensors ergeben nun wegen dem endlichen Raumwinkelgebiet keine lineare, sondern eine quadratische Feldabhängigkeit. Die schon erwähnten Messungen von ALEKSEEVSKII und GAIDUKOV<sup>32)</sup> an Au-Einkristallen bestätigen die in V gezeigten theoretischen Ergebnisse für Einkristalle sehr schön, weshalb sehr wahrscheinlich ein richtiges Mittelungsverfahren die lineare Feldabhängigkeit der transversalen magnetischen Widerstandsänderung erklären würde.

c) Energieflächen für mehrwertige Metalle: Wir versuchen die Feldabhängigkeit der Widerstandsänderung der Metalle Zn, Sn und Pb zu interpretieren (s. Tab. 3). Die Tatsache, dass die Widerstandsänderung weder quadratisch vom Felde abhängt, noch sich sättigt, kann durch die Existenz offener Bahnen erklärt werden. Diese Annahme ist kürzlich durch Messung der magnetischen Widerstandsänderung von Sn- und Pb-Einkristallen bestätigt worden<sup>33)</sup>. Für diese Metalle sollte die Fermifläche topologisch nicht von den unter b) besprochenen Fällen verschieden sein; jedoch kann das Auftreten von zwei Sorten von Ladungsträgern das Hallfeld und damit auch den Widerstand beeinflussen. Für den unter a) besprochenen Fall, wo  $n_+ = n_-$  gilt (nur geschlossene Bahnen), hängt der Widerstand quadratisch vom Felde ab. Falls nur eine Sorte von Ladungsträgern offene Bahnen aufweist, kann als eine Folge von  $\int S(\varphi, k_z) dk_z = \pm (V_B - V_i)$  ( $S$  Querschnittsfläche der Fermifläche senkrecht zum Magnetfeld,  $V_B$  Volumen der Brillouinzone,  $V_i$  Volumen des von der Fermifläche und der Brillouinzone begrenzten Körpers) wieder ein Hallfeld aufgebaut werden. Die Mittelungen des Leitfähigkeits- und des Widerstandstensors ergeben dann die in b) diskutierten Resultate. Wenn andererseits bei beiden Sorten von Ladungsträgern offene Bahnen möglich sind, verschwindet das Hallfeld wiederum, die Mittelungen ergeben eine quadratische Feldabhängigkeit für den Widerstand. Diese einfachen Mittelungsverfahren ergeben also auch hier nicht die beobachteten Feldabhängigkeiten.

d) Übergangsmetalle: Der Widerstand der Metalle Fe, Ni und Pt zeigt eine etwas weniger starke Feldabhängigkeit als der der übrigen mehrwertigen Metalle. Infolge der etwas geringeren Reinheit der von uns verwendeten Proben konnten wir mit den Messungen nicht sehr tief ins Hochfeldgebiet vordringen. Theoretisch erwarten wir bei den ferromagne-

tischen Metallen in der Hochfeldregion kein von den anderen Metallen prinzipiell verschiedenes Verhalten, da das innere Feld schon sehr klein verglichen mit dem äusseren ist.

e) Longitudinale magnetische Widerstandsänderung: Bei allen diskutierten Typen von geschlossenen und offenen Bahnen zeigt die longitudinale Komponente des Leitfähigkeits- und des Widerstandstensors eines Einkristalles eine Sättigung in hohen Feldern. Eine Mittelung über die Kristallorientierungen muss dann auch für ein polykristallines Metall immer eine Sättigung der longitudinalen magnetischen Widerstandsänderung geben. Dieses Verhalten wird sehr schön durch unsere Messungen (Fig. 5) bestätigt. Eine Ausnahme bilden Fe und Li. Bei Fe ist dies wahrscheinlich auf die ungenügende Reinheit des Metalles zurückzuführen, eine Sättigung wird vielleicht bei noch höheren Feldern auftreten. Im Falle von Li hingegen befinden wir uns im Hochfeldgebiet; die Widerstandsänderung erfüllt ein streng lineares Gesetz. In diesem Zusammenhang ist die Tatsache erwähnenswert, dass für eine exakte zylindrische Fermifläche der longitudinale Widerstand bei Mittelung über den Leitfähigkeitstensor linear, bei Mittelung über den Widerstandstensor sogar quadratisch vom Felde abhängt<sup>18)</sup>. Es ist jedoch unrealistisch anzunehmen, dass die Fermifläche von Li, obwohl sehr anisotrop<sup>34)</sup>, aus vier sich durchdringenden exakten Zylindern bestehen soll. Man könnte vielleicht folgende Erklärung geben: Nehmen wir der Einfachheit halber an, die Feldabhängigkeit der longitudinalen Widerstandsänderung sei durch folgenden Ausdruck gegeben:  $\alpha (\omega \tau)^2 / (1 + \beta (\omega \tau)^2)$ . Es ist denkbar, dass die Konstante  $\beta$  wegen der Fermiflächenstruktur oder wegen des Mittelungsverfahrens viel kleiner als 1 ist. Deshalb werden Anzeichen einer Sättigung erst bei höheren Werten von  $\omega \tau$  bemerkbar.

Die Sättigungswerte der gemessenen Metalle schwanken zwischen den Werten 0,3 und 4. Dies kann sehr gut mit Hilfe der Anisotropie der Energieflächen erklärt werden. So ergeben zum Beispiel Rechnungen an Fermiflächen, die aus einzelnen Rotationsellipsoidstücken zusammengesetzt sind, einen asymptotischen Wert der longitudinalen magnetischen Widerstandsänderung von  $\Delta R/R_0 \approx 1^{28)}$ .

Zusammenfassend kann man sagen, dass die Berechnung der magnetischen Widerstandsänderung eines polykristallinen Metalles noch nicht durchführbar ist, selbst wenn man das Verhalten eines Einkristalles genau kennt. Andererseits scheint es aber nur noch an diesem schwierigen Mittelungsverfahren zu liegen, dass man heute die experimentellen Resultate noch nicht eindeutig interpretieren kann.

4. *Schlussbemerkungen.* Wir haben versucht, allein auf Grund des topologischen Verhaltens der Fermifläche unsere Resultate von Messungen der magnetischen Widerstandsänderung polykristalliner Metalle in hohen



Feldern zu erklären. Dies ist für die longitudinale und auch für einige Fälle der transversalen Widerstandsänderung geglückt. Für die restlichen Metalle wissen wir wenigstens, dass die Voraussetzungen zur Erklärung der Effekte im wesentlichen die richtigen sein müssen, obschon die Rechnung, das Mittelungsverfahren, bis heute noch undurchführbar erscheint.

Falls diese Interpretation unserer Resultate zutrifft, hat man folgende bemerkenswerte Tatsachen anzunehmen: Bei den drei einwertigen Metallen Cu, Ag und Au berührt die Fermifläche die Brillouinzone. Dies widerspricht den bisherigen Vorstellungen teilweise<sup>34)</sup>. Andererseits bestätigen weitere experimentelle Daten diesen Sachverhalt<sup>31)32)</sup>. Die Fermiflächen der mehrwertigen Metalle Zn, Sn und Pb haben solche Strukturen, dass offene Bahnen für gewisse Magnetfeldrichtungen möglich sind. Für Sn und Pb kommt man mit anderen Messungen zum gleichen Schluss<sup>33)</sup>, hingegen ergibt eine, aus de-Haas-van-Alphen-Effekt-Daten konstruierte Fermifläche von Pb, keine offenen Bahnen<sup>35)</sup>. Bei Al und In schliesslich ist das Auftreten offener Bahnen nicht anzunehmen; dies ist vor allem bei Al in guter Übereinstimmung mit verschiedenen anderen Effekten<sup>28)</sup>.

Unsere Ausführungen über die Magnetfeldabhängigkeit des elektrischen Widerstandes in hohen Feldern können auch übertragen werden auf den Fall der thermischen magnetischen Widerstandsänderung. Leider liegen nur wenige experimentelle Resultate vor, jedoch zeigen die bisherigen Messungen an Zn, Pb, Tl, Sn und Ga<sup>36)</sup> eine sehr schöne Übereinstimmung des Feldverhaltens des thermischen Widerstandes mit unseren Resultaten des elektrischen Widerstandes. Insbesondere zeigen auch die longitudinalen Messungen alle eine Sättigung in hohen Feldern. Schliesslich sei noch eine Arbeit über die thermische magnetische Widerstandsänderung an Zn-Einkristallen erwähnt<sup>37)</sup>. In Übereinstimmung mit unseren Befunden macht auch diese Arbeit die Existenz von offenen Bahnen für die Fermifläche dieses Metalles deutlich.

Herrn Professor Dr. P. GRASSMANN, dem Leiter dieses Institutes, möchte ich für sein wohlwollendes Interesse an dieser Arbeit herzlich danken. Vor allem liegt mir daran, Herrn Dr. J. L. OLSEN für die grosse Hilfe, die er durch kritische Bemerkungen, aber auch durch Rat und Tat, dieser Arbeit schenkte, meinen tiefen Dank auszusprechen. Herrn Dr. W. BALTENSPERGER sowie meinen Kollegen, den Herren P. COTTI, S. GYGAX, H. ROHRER und P. WYDER danke ich für viele anregende Diskussionen. Diese Arbeit wurde durch den Arbeitsbeschaffungskredit des Bundes finanziell unterstützt.



## Literaturverzeichnis

- 1) P. KAPITZA, Proc. Roy. Soc. [A] 123, 292 (1929).
- 2) E. JUSTI, Leitfähigkeit und Leitungsmechanismus fester Stoffe, Vandenhoeck und Ruprecht, 64, Göttingen (1948).
- 3) E. S. BOROVIK, J. Exp. Theor. Phys. USSR 27, 355 (1954).
- 4) R. G. CHAMBERS, Proc. Roy. Soc. [A] 238, 344 (1956).
- 5) J. DE LAUNAY, R. L. DOLECEK, R. T. WEBBER, J. Phys. Chem. Solids 17, 37 (1959).
- 6) J. L. OLSEN, Helv. Phys. Acta 26, 798 (1953).
- 7) P. COTTI, ZAMP 11, 17 (1960).
- 8) J. L. OLSEN, L. RINDERER, Nature 173, 686 (1954).
- 9) D. K. C. MAC DONALD, J. Sci. Inst. 24, 232 (1947).
- 10) B. LÜTHI, J. L. OLSEN, Nuovo Cimento 3, 840 (1956).
- B. LÜTHI, Helv. Phys. Acta 29, 217 (1956).
- B. LÜTHI, J. L. OLSEN, Proc. 5th Int. Conf. Low Temp. Phys. 479, Madison (1957).
- 11) R. G. CHAMBERS, Proc. Roy. Soc. [A] 202, 378 (1950).
- 12) J. L. OLSEN, Helv. Phys. Acta 31, 713 (1958).
- 13) B. LÜTHI, Phys. Rev. Letters 2, 503 (1959).
- 14) T. H. K. BARRON, D. K. C. MAC DONALD, Physica 24, 102 (1958).
- 15) B. LÜTHI, Kamerlingh Onnes Conference on Low Temperature Physics, Leiden 1958.
- 16) M. KOHLER, Ann. Phys. Lpz. 5, 89 (1949).
- 17) I. M. LIFSHITZ, M. Y. AZBEL, M. I. KAGANOV, J. Exp. Theor. Phys. USSR 31, 63 (1956). Übersetzung: JETP 4, 41 (1957).
- 18) J. M. ZIMAN, Phil. Mag. 3, 1117 (1958).
- 19) I. M. LIFSHITZ, V. G. PESCHANSKII, J. Exp. Theor. Phys. USSR 35, 1251 (1958). Übersetzung: JETP 8, 875 (1959).
- 20) L. I. SCHIFF, Quantum Mechanics, 137, Mac Graw Hill Book Comp. Inc., London (1949).
- 21) J. M. LUTTINGER, Phys. Rev. 84, 814 (1951).
- 22) H. JONES, C. ZENER, Proc. Roy. Soc. [A] 144, 101 (1934).
- 23) I. M. LIFSHITZ, J. Phys. Chem. Solids 4, 11 (1958).
- 24) J. P. JAN, Solid State Physics, F. Seitz und D. Turnbull ed., Vol. 5, 87 (1957).
- 25) M. KOHLER, Ann. Phys. Lpz. 32, 211 (1938).
- 26) D. L. MARTIN, Phys. Rev. Letters 1, 447 (1958).
- 27) J. S. DUGDALE (private Mitteilung).
- 28) B. LÜTHI, Helv. Phys. Acta 32, 470 (1959).
- 29) G. E. ZILBERMAN, J. Exp. Theor. Phys. USSR 29, 762 (1955). Übersetzung: JETP 2, 650 (1956).
- 30) P. N. ARGYRES, Phys. Rev. 109, 1115 (1958).
- 31) A. B. PIPPARD, Phil. Trans. [A] 250, 325 (1957).
- 32) N. I. ALEKSEEVSKII, Y. P. GAIDUKOV, J. Exp. Theor. Phys. USSR 35, 554 (1958). Übersetzung: JETP 8, 383 (1959).
- 33) N. I. ALEKSEEVSKII, Y. P. GAIDUKOV, J. Exp. Theor. Phys. USSR 36, 447 (1959). Übersetzung: JETP 9, 311 (1959).
- 34) M. H. COHEN, V. HEINE, Adv. in Phys. 7, 395 (1958).
- 35) A. V. GOLD, Phil. Trans. [A] 251, 85 (1958).
- 36) K. MENDELSSOHN, H. M. ROSENBERG, Proc. Roy. Soc. [A] 278, 190 (1953).
- 37) R. T. WEBBER, P. B. ALERS, D. A. SPOHR, Report of NRL Progress, Oktober 1955.

## Etude par la résonance magnétique dans des jets atomiques, d'états excités des atomes cadmium et zinc, et des ions cadmium II et zinc II

par **Edmond Geneux** et **Barbara Wanders-Vincenz**

Institut de Physique de l'Université, Genève

(28 X 1959)

*Summary.* The magnetic dipole resonance method is applied to excited levels of Cd, Zn, Cd II and Zn II, in an atomic beam. The levels can be excited either by an optical method or by electron impact.

The following quantities have been determined:

Atomic Cd:  $5^3P_1$  state

- a) ratio of Landé  $g$  factors for even and odd isotopes
- b) hyperfine structure constant of  $\text{Cd}^{111}$ ,  $\text{Cd}^{113}$
- c) lifetime
- d) polarization percentage versus electron energy

$6^1D_2$  state: lifetime

$4^3F_4$  state: lifetime

Atomic Zn:  $4^3P_1$  state

polarization percentage versus electron energy

$5^1D_2$  state: lifetime

Cd II:  $4\ d^9\ 5\ s^2\ ^2D_{5/2}$  state and

Zn II:  $3\ d^9\ 4\ s^2\ ^2D_{3/2}$  state:

- a) lifetime
- b) polarization percentage

This seems to be the first time that magnetic dipole resonance of nonmetastable excited states of free ions has been observed.

In addition, this work leads to some general considerations concerning the possibility of applying the magnetic dipole resonance method to atomic beams.

### Introduction

Le travail présenté consiste à appliquer la résonance magnétique à l'étude des propriétés des niveaux atomiques et ioniques de cadmium et de zinc. D'autres atomes ont été étudiés par des méthodes analogues:

Hg [1 – 4], Na [5 – 9], Cs [10 – 12], Rb [13,14].

Il nous semble que c'est la première fois que l'on observe la résonance magnétique sur des niveaux excités non métastables d'ions libres.

Le cadmium et le zinc font partie de la seconde colonne du tableau périodique des éléments, leur nombre atomique et leur masse étant :

pour le cadmium  $Z = 48$ ,  $A = 112,41$

pour le zinc  $Z = 30$ ,  $A = 65,4$

L'abondance naturelle d'isotopes stables est pour le cadmium, environ 75% d'isotopes pairs, sans spin nucléaire, et environ 25% d'isotopes impairs, de spin nucléaire  $I = 1/2$ ; pour le zinc, environ 96% d'isotopes pairs, sans spin, et 4% d'isotopes impairs de spin  $I = 5/2$ .

Les figures 1 et 2 donnent le schéma des niveaux d'énergie et des transitions optiques de ces deux éléments.

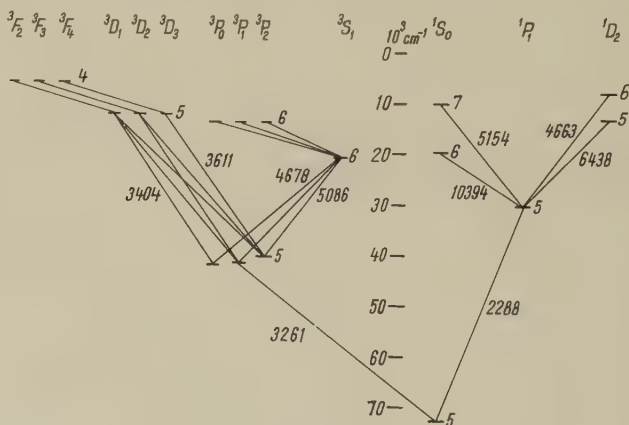


Fig. 1

Niveaux d'énergie et transitions du cadmium

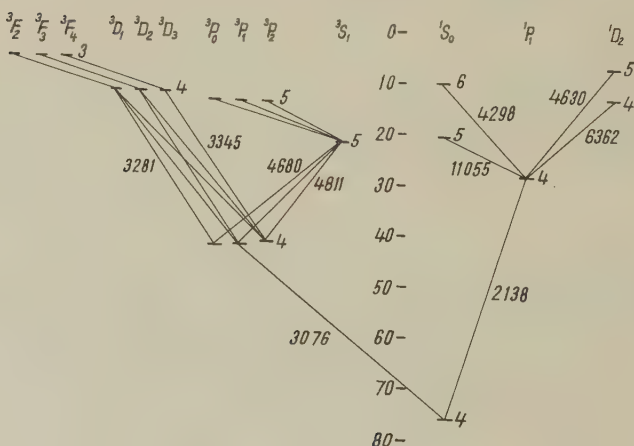


Fig. 2

Niveaux d'énergie et transitions du Zinc

## I. Principe de la méthode

L'étude des propriétés atomiques nécessite des atomes à l'état libre, afin de réduire au minimum les interactions qui pourraient affecter les grandeurs mesurées. Dans ce but, on étudie les atomes sous forme de jet où les interactions n'existent pratiquement pas.

L'excitation des niveaux atomiques peut se faire de deux manières:

### 1. Excitation optique

Par absorption de leur raie de résonance, on porte les atomes dans leur premier niveau excité (transition  $^1S_0 - ^3P_1$ , pour les atomes étudiés).

### 2. Excitation par chocs électroniques

La diffusion inélastique d'électrons par les atomes s'accompagne d'émission de lumière. Tout le spectre de l'atome peut être obtenu en faisant varier l'énergie des électrons.

Le deuxième mode d'excitation est plus général puisqu'il permet d'atteindre tous les niveaux atomiques. Le premier, quoique ne permettant d'atteindre que le premier niveau excité ( $^3P_1$ ), donne une plus grande précision, la lumière émise par les atomes étant plus intense dans le cas de l'excitation optique. C'est pour ces raisons que nous avons utilisé les deux modes sur le Cd, où l'étude de l'état  $5^3P_1$  permettait d'obtenir plusieurs renseignements.

### 1. Excitation optique

Lorsqu'on éclaire un atome avec sa raie de résonance polarisée, les sous-niveaux magnétiques de l'état excité seront peuplés de manière anisotrope. La lumière réémise par l'atome sera donc, aussi, polarisée. L'excitation (et la réémission) en lumière  $\pi$  (polarisée linéairement) correspond à la transition  $\Delta m = 0$ , l'excitation (et la réémission) en lumière  $\sigma$  (polarisée circulairement) – à la transition  $\Delta m = \pm 1$ .

Un champ magnétique  $H$ , constant, détermine la direction de quantification. D'après le principe de stabilité spectroscopique de HEISENBERG, en l'absence de champ magnétique ( $H = 0$ ), c'est le vecteur électrique de l'onde électromagnétique qui détermine la direction de quantification.

Le caractère de polarisation ne sera pas modifié entre la lumière absorbée et la lumière réémise, aussi longtemps que l'atome dans son état excité ne subit pas de perturbation. Toute perturbation tendant à égaliser les populations des sous-niveaux magnétiques du niveau excité, entraîne une variation de la polarisation de la lumière réémise.

En particulier, un champ magnétique de haute fréquence – perpendiculaire au champ  $H_0$ , et dont la fréquence est reliée au champ magnétique constant par la relation

$$\omega = \frac{\Delta E}{\hbar} = \gamma H_0$$

( $\gamma$  rapport gyromagnétique de l'état excité) – provoque des transitions entre les sous-niveaux magnétiques adjacents, ayant pour résultat une égalisation des populations de ces sous-niveaux, donc une dépolarisation de la lumière réémise.

On obtient les courbes de résonance magnétique, en portant la variation du taux de polarisation de la lumière réémise en fonction de la fréquence du champ de haute fréquence (ou en fonction du champ  $H_0$ , à cause de la relation  $\omega = \gamma H_0$ ).

## 2. Excitation par chocs électroniques

SKINNER et APPLEYARD<sup>15)</sup> ont observé que la lumière émise par des atomes excités par chocs électroniques était polarisée. Le taux de polarisation varie en fonction de l'angle  $\theta$  entre la direction du faisceau d'électrons incidents et la direction d'observation. Il est maximum pour  $\theta = 90^\circ$ .

Des tentatives d'interprétation théorique ont été faites par BETHE<sup>16)</sup> et par OPPENHEIMER<sup>17)</sup>. Le point de départ des considérations de BETHE est la formule de diffusion de BORN. Selon cette formule, la probabilité d'excitation du niveau atomique d'indice  $n$  est donnée par:

$$F(\mathbf{p} - \mathbf{p}') = - \int u_n^* u_0 \sum_j e^{\frac{i}{\hbar} (\mathbf{p} - \mathbf{p}', \mathbf{r}_j)} d\tau$$

où  $u_n, u_0$  sont, respectivement, la fonction propre de l'état excité  $n$ , et de l'état initial

$\mathbf{p}, \mathbf{p}'$  – respectivement la quantité de mouvement de l'électron incident, avant et après le choc

$\mathbf{r}_j$  – coordonnées spatiales du  $j$ -ième électron atomique. L'intégration s'effectue sur l'espace de configuration des électrons atomiques.

Des considérations d'invariance de l'intégrale, lorsqu'on fait tourner le système de coordonnées d'un angle  $\varphi$  autour de l'axe  $\mathbf{p} - \mathbf{p}'$ , – ce qui revient à multiplier les fonctions propres,  $u_n$  et  $u_0$ , par  $e^{im\varphi}$  respectivement par  $e^{im_0\varphi}$ , – on tire  $m_0 - m = 0$ . On conclut à un peuplement anisotrope des sous-niveaux magnétiques de l'état excité, d'où il résulte une polarisation de la lumière émise.

BETHE considère deux cas limites:

1. l'énergie de l'électron incident est près du seuil d'excitation du niveau atomique,  $\mathbf{p}' \approx 0$ ;  $\mathbf{p} - \mathbf{p}'$  garde la direction de  $\mathbf{p}$ , qui joue le rôle d'axe de quantification. La polarisation de la lumière sera linéaire, parallèle à  $\mathbf{p}$ .

2. pour les électrons de grandes énergies, pratiquement peu déviés,  $\mathbf{p}' \approx \mathbf{p}$ ; alors  $\mathbf{p} - \mathbf{p}'$  est perpendiculaire à  $\mathbf{p}$ . La polarisation de la lumière sera linéaire, perpendiculaire à  $\mathbf{p}$ .



Pour expliquer la polarisation inverse des raies d'intercombinaison entre les systèmes triplet et singulet BETHE et OPPENHEIMER ont fait remarquer qu'il fallait tenir compte de l'échange de spin entre l'électron incident et l'électron atomique.

En fait, les résultats de SKINNER et APPLEYARD (*loc. cit.*) ne vérifient que partiellement les considérations ci-dessus. Il semble qu'elles ne puissent donner qu'une explication qualitative du phénomène puisque, d'une part, l'approximation de BORN, qui en est la base, est valable surtout aux grandes énergies, et, d'autre part, elles négligent d'autres interactions possibles.

Toutefois, le fait important pour le présent travail est que le peuplement anisotrope des sous-niveaux magnétiques permet, comme dans le cas de l'excitation optique, leur étude par la résonance magnétique.

3. Grandeurs physiques mesurables

a) facteur de Landé

Le facteur de Landé  $g$  est relié à la valeur de champ magnétique constant à la résonance par la relation :

$$2 \pi \nu = \omega = \gamma H_0 = g \frac{\mu_0}{\hbar} H_0$$

b) structure hyperfine

En présence d'un spin nucléaire  $1/2$ , le niveau  $5\ ^3P_1$  du Cd se sépare en deux niveaux hyperfins  $F = 3/2, F = 1/2$ .

En présence d'un champ magnétique  $H$ , l'hamiltonien est donné par :

$$\mathfrak{H} = -g_J \frac{\mu_0}{\hbar} m_J H + \lambda (m_I m_J)$$

- où  $g_J$  - facteur de Landé du niveau électronique ( $g_J = 3/2$ )  
 $m_J, m_I$  - respectivement, nombre quantique magnétique électronique et nucléaire  
 $\mu_0$  - magnéton de Bohr  
 $\lambda$  - constante de structure hyperfine

en négligeant le terme qui représente l'interaction du champ magnétique avec le moment nucléaire (environ 1800 fois plus petit).

Pour déterminer  $\lambda$  écrivons l'énergie des sousniveaux magnétiques  $m_F$ . Les nombres quantiques magnétiques  $m_J$  et  $m_I$  se combinent de la façon suivante, pour donner le nombre quantique magnétique  $m_F$  (bon nombre quantique):

$m_F$	$m_J$	$m_I$
3/2	1	1/2
1/2	0	1/2
	1	-1/2
-1/2	0	-1/2
	-1	1/2
-3/2	-1	-1/2

A ces nombres  $m_F$  correspondent les énergies suivantes (pour les calculs voir Annexe I):

$$m_F = 3/2 \quad \frac{E}{h} = 3/2 \frac{\mu_0}{h} H - \frac{1}{2} \lambda \quad (1)$$

$$m_F = 1/2 \quad \frac{E}{h} = \frac{1}{2} \left[ -\frac{\lambda}{2} - \frac{3}{2} \frac{\mu_0}{h} H \pm \sqrt{\left(\frac{\lambda}{2} + \frac{3}{2} \frac{\mu_0}{h} H\right)^2 + 2\lambda^2} \right] \quad (2)$$

$$m_F = -1/2 \quad \frac{E}{h} = \frac{1}{2} \left[ -\frac{\lambda}{2} + \frac{3}{2} \frac{\mu_0}{h} H \pm \sqrt{\left(\frac{\lambda}{2} + \frac{3}{2} \frac{\mu_0}{h} H\right)^2 + 2\lambda^2} \right] \quad (3)$$

$$m_F = -3/2 \quad \frac{E}{h} = -3/2 \frac{\mu_0}{h} H - \frac{1}{2} \lambda \quad (4)$$

(voir fig. 3).

La différence d'énergie entre les sous-niveaux  $m_F = 3/2$  et  $m_F = 1/2$  sera donnée par la différence des termes (1) et (2); entre  $m_F = -3/2$  et

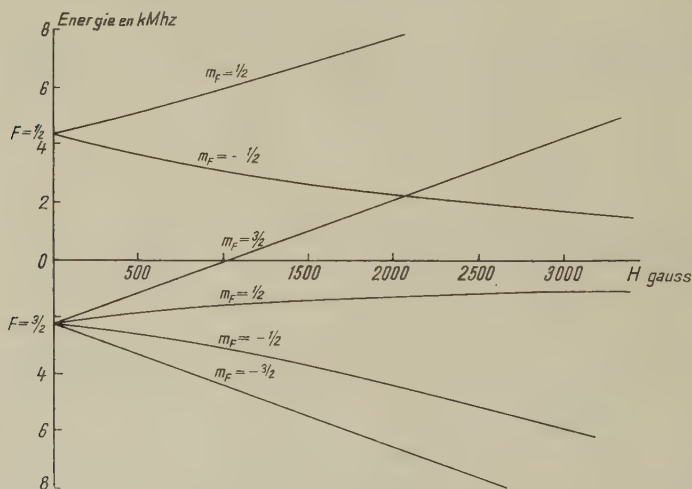


Fig. 3  
Niveaux Zeeman hyperfins du Cd

$m_F = -1/2$  par la différence des termes (3) et (4). Cette différence d'énergie correspond à la fréquence de résonance d'après  $\Delta E = h \nu$ .

Travaillant à fréquence constante et à champ magnétique variable, explicitons le champ magnétique  $H$  en fonction de la fréquence  $\nu$  et de la constante de structure hyperfine  $\lambda$ .

$$\text{Transition } m_F = 3/2 \rightarrow m_F = 1/2 : 3/2 \frac{\mu_0}{h} H' = \frac{\nu \left( \frac{3}{2} \lambda - \nu \right)}{\lambda - \nu}$$

$$m_F = -1/2 \rightarrow m_F = -3/2 : 3/2 \frac{\mu_0}{h} H'' = \frac{\nu \left( \frac{3}{2} \lambda + \nu \right)}{\lambda + \nu}$$

A partir du rapport  $H'/H'' =$  rapport des courants magnétisants  $I'/I''$ , on peut déterminer directement la valeur de  $\lambda$ .

Avec 
$$a = \frac{H'}{H''} = \frac{I'}{I''}$$

$$\lambda = \frac{\nu}{6} \left( \frac{a+1}{a-1} \pm \sqrt{\left( \frac{a+1}{a-1} \right)^2 + 24} \right)$$

Seule la solution avec le signe  $+$  a un sens physique.

### c) durée de vie

La méthode est due à KASTLER<sup>18)</sup> et BROSEL<sup>1)</sup> BROSEL a montré<sup>1)</sup> que la largeur des courbes de résonance est fonction, simultanément, de la durée de vie de l'état excité et de la puissance du champ de haute fréquence appliqué. Pour l'état  $^3P_1$  on a la relation :

$$(\Delta\omega)^2 = \frac{4}{T_e^2} [1 + 5,8 (\gamma H_1 T_e)^2]$$

où  $\Delta\omega$  - largeur de la courbe de résonance à la demi-hauteur

$T_e$  - durée de vie de l'état excité

$H_1$  - amplitude du champ de haute fréquence

$(\Delta\omega)^2$  en fonction de  $(\gamma H_1 T_e)^2$  donne une droite. L'extrapolation vers la valeur  $H_1 \rightarrow 0$  donne la durée de vie  $T_e$ , à partir du terme  $2/T_e$ , largeur naturelle de la raie.

Pour les autres états excités, la relation  $(\Delta\omega)^2$  en fonction de  $(\gamma H_1 T_e)^2$  n'est pas connue, mais la largeur de la raie pour  $H_1 \rightarrow 0$  étant toujours  $2/T_e$ , on pourra déterminer  $T_e$ .

La méthode de détermination des durées de vie à partir des demi-largeurs n'est pas toujours applicable lors de l'excitation électronique, vu la faible intensité des signaux émis par certains niveaux. Dans ce cas, la hauteur des résonances peut être mesurée de manière plus précise que les demi-largeurs. A partir des hauteurs de résonance on peut déterminer le facteur  $\gamma H_1 T_e$  de l'état étudié. La comparaison du facteur  $\gamma H_1 T_e$ , du niveau étudié et du niveau  $^3P_1$ , donnera alors la valeur relative des durées de vie. La méthode est exposée dans l'Annexe II.

## II. Description du dispositif

Le dispositif (fig. 4) comporte :

a) Un *tube en pyrex* (fig. 5), de 5 cm de diamètre, d'une longueur d'environ 30 cm ; l'une des extrémités se terminant par un tube capillaire de 0,4 cm de diamètre intérieur, et de 5 cm de longueur, suivi d'un petit récipient sphérique de 1,5 cm de diamètre, rempli de métal à évaporer, servant de source au jet atomique.

Le récipient et le tube capillaire (fig. 5A) sont placés dans un four extérieur (fig. 5B), formé d'un tube de silice de 2 cm de diamètre intérieur. L'enroulement de chauffage est reparti de façon que la température du canal soit légèrement supérieure à celle du four, pour éviter de boucher

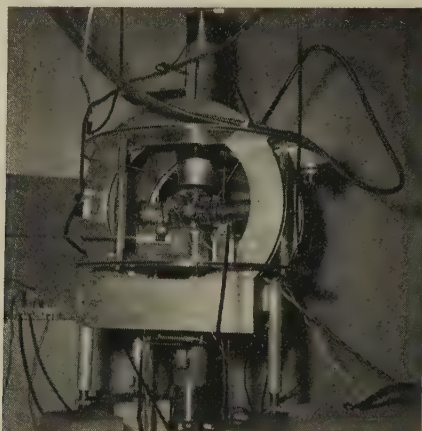


Fig. 4  
Photographie du dispositif

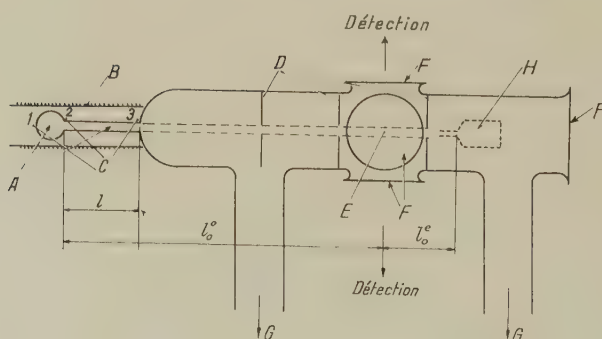


Fig. 5  
Schéma du dispositif

- A source et canal (excitation optique)
- B four
- C 3 thermocouples
- D diaphragmes
- E endroit d'observation
- F 5 rodages et disques plans
- G tubes de pompage
- H source (excitation électronique)

le canal. Trois thermocouples (fig. 5C) en contact avec la paroi extérieure du verre permettent de connaître la répartition des températures.

Le bobinage du four est recouvert d'une couche d'amiante, pour diminuer les pertes de chaleur par rayonnement.

Le four est alimenté par une batterie de 32 V, 1200 Amp·h, ce qui assure une bonne stabilité de fonctionnement. Les températures de travail variaient entre 230°C et 300°C.

Le jet atomique sortant du canal est délimité par une série de diaphragmes (fig. 5D), d'ouverture circulaire, allant de 4 à 7 mm. Les deux diaphragmes voisins de la région d'observation, sont en verre noir, afin de diminuer la lumière parasite.

Le diamètre du jet ainsi délimité est 5 mm à l'endroit d'observation (fig. 5E). La distance entre l'extrémité du canal et l'endroit d'observation est de 16 cm.

Le tube comporte 5 rodages (fig. 5F): un devant, et 4 rapportés latéralement sur le tube, fermés par 5 disques plans en silice fondue. Les 4 disques latéraux, disposés à angles droits les uns par rapport aux autres, servent, deux à deux, à l'irradiation et à la détection. Le cinquième disque permet la détection en avant du tube.

Le tube est placé horizontalement. Deux canaux verticaux (fig. 5G) servent à l'évacuation du tube.

b) Un *groupe de pompage*, Balzers LAB 250, comprenant une pompe préliminaire DUO 25, et une pompe à diffusion d'huile DIFF 250. Le vide limite est de l'ordre de  $5 \cdot 10^{-6}$  mm Hg.

On mesure le vide à l'aide d'une jauge du type Penning, placée loin du jet atomique afin que son champ magnétique soit négligeable à l'endroit d'observation. On ne connaît donc que l'ordre de grandeur du vide à cet endroit.

c) *Deux paires de bobines de Helmholtz*: l'une – créant un champ horizontal, parallèle à la composante horizontale du champ terrestre – de caractéristiques suivantes:

rayon moyen 205,6 mm,

nombre de tours 364,

diamètre du fil de cuivre 2 mm,

résistance de deux bobines en série 2,6  $\Omega$ ,

champ magnétique pour 1 Amp.  $7,939 \pm 0,008$  gauss,

l'autre, produisant un champ vertical, de caractéristiques

rayon moyen 253,75 mm,

nombre de tours 40,

diamètre du fil de cuivre 1 mm,

résistance de deux bobines en série 1,45  $\Omega$ ,

champ magnétique pour 1 Amp.  $0,707 \pm 0,004$  gauss.



Une telle disposition permet de compenser le champ terrestre. L'un ou l'autre des champs peut servir de champ de résonance.

L'alimentation en courant provient des batteries d'accumulateurs de 12 V ou de 36 V, 300 A-h.

La mesure du courant dans les bobines se fait à l'aide d'un pont AOIP permettant une précision de  $10^{-4}$ .

d) *Deux lampes spectrales* Osram, alimentées en courant alternatif (1,3 A, pour retrécir la raie de résonance, le courant de fonctionnement normal étant 1,5 A), suivies d'une optique: lentilles en cilice fondue (Herasil I), focalisant l'image des lampes sur le jet atomique, et les polariseurs du type Foucault, de  $8^\circ$  d'ouverture, permettant l'excitation du niveau  $^3P_1$  en lumière polarisée.

Les lampes peuvent être placées soit verticalement, soit horizontalement, de part et d'autre du tube, selon qu'on travaille en champ magnétique horizontal ou vertical.

e) *Un système de détection*: deux tubes photomultiplicateurs RCA 1P21, précédés d'une optique (lentilles en Herasil I), focalisant sur leur photocathode la lumière réémise par le jet. L'un des tubes détecte la lumière émise horizontalement en avant du tube (perpendiculairement au champ magnétique), l'autre celle émise parallèlement au champ magnétique (lumière  $\sigma$ ), soit horizontalement, soit verticalement, selon qu'on travaille en champ horizontal ou vertical.

Les tubes sont protégés de l'influence du champ magnétique par des capuchons antimagnétiques de la Perfection Mica Co.

Les tubes sont alimentés par une tension stabilisée à  $10^{-4}$  en tension, leur tension de travail pouvant varier de 500 V à 900 V. Ils sont montés en opposition, pour compenser les fluctuations du signal. La différence des courants des photomultiplicateurs est lue par un galvanomètre, d'une sensibilité  $2,2 \cdot 10^{-11}$  A/mm/m, d'une période de 12 secondes. Les déviations sont enregistrées par un enregistreur SEFRAM.

f) *Un oscillateur à quartz*, de fréquence fixe de 3,010 Mc/sec, de 3 watts, alimentant une paire de bobines placées sur le tube, créant le champ de haute fréquence à l'endroit d'observation.

Les mesures relatives d'amplitudes du champ de haute fréquence se font à l'aide d'un millivoltmètre haute fréquence Philips.

Pour la mesure de structure hyperfine, un oscillateur à circuit accordé de 80,84 Mc/sec.

Les modifications du dispositif pour l'excitation par chocs électroniques sont les suivantes:

a) *Le tube à électrons* remplace les lampes spectrales.

D'après des mesures antérieures (SKINNER et APPELYARD, *loc. cit.*), le taux de polarisation est optimum pour les énergies d'électrons proches

du seuil d'excitation (de l'ordre de quelques électrons-volts à une vingtaine d'électrons-volts). Il est donc nécessaire de travailler avec des électrons mous et une optique électronique adaptée.

La figure 6 donne un schéma du tube électronique. Il comporte: une cathode et cinq électrodes en molybdène.

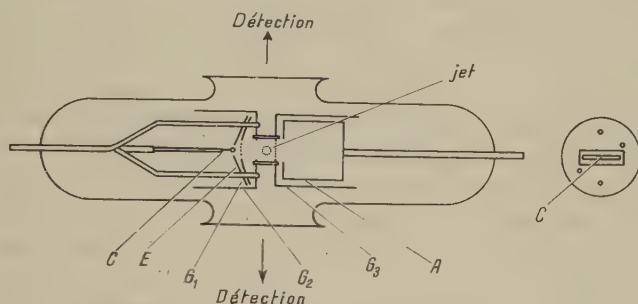


Fig. 6

Disposition du tube électronique

- C = cathode
- E = écran
- $G_1$  = grille d'extraction
- $G_2, G_3$  = grilles définissant l'énergie des électrons
- A = anode

La cathode C, à chauffage indirect, est constituée par un tube de PtIr, de 2 mm de diamètre et 15 mm de longueur, enroulé sur un support de dégussite, dans lequel passe le filament de chauffage en tungstène. La couche émissive est constituée par un mélange de BaO et SrO, appliqués en couches successives, activées progressivement pendant une heure et demie (ESPE et KNOLL<sup>19</sup>). La couche émissive s'empoisonne au contact des molécules d'air, et on doit la refaire après chaque rentrée d'air dans le dispositif.

La forme de deux premières électrodes a été déterminée à partir d'un travail de PIERCE<sup>20</sup>). Elles ont pour but de former un faisceau parallèle d'électrons mous.

La première électrode (fig. 6E) est au potentiel de la cathode. La deuxième (fig. 6  $G_1$ ) comporte une grille en fils de PtIr, d'un diamètre de 0,05 mm et espacés de 1 mm. Elle sert de grille d'extraction ou d'accélération, son potentiel variant de 2 à 50 V. Elle est distante de 1,5 mm de la cathode.

Les électrodes  $G_2$  et  $G_3$  sont des plaques circulaires planes, prolongées par des parois cylindriques, dans le double but de capter les électrons vagabonds qui chargeraient les parois du tube de verre, et d'éliminer la lumière émise par la cathode. Les faces planes de ces électrodes ont été

recouvertes de noir de platine, par dépôt électrolytique, pour diminuer les réflexions de la lumière venant de la cathode.

L'électrode  $G_2$  comporte une ouverture rectangulaire de dimensions:  $15 \times 7$  mm qui focalise les électrons lorsque le potentiel de  $G_1$  est supérieur à celui de  $G_2$ ;  $G_3$  — une grille analogue à celle de  $G_1$ .

Les deux électrodes distantes de 7 mm sont portées au même potentiel. C'est dans l'espace sans champ entre les deux qu'à lieu l'excitation du jet atomique.

L'anode (fig. 6A) est collectrice d'électrons. Sa forme a pour but d'éviter la réémission d'électrons secondaires lorsque l'énergie des électrons primaires est élevée. La plupart des mesures ont été faites avec l'anode au même potentiel que  $G_2$  et  $G_3$ .

Les électrodes sont fixées à cinq tiges de tungstène, servant d'amenées de courant. Le tout est placé dans un tube de verre, fermé à une extrémité sur les traversées de tungstène, et pourvu à l'autre extrémité d'un rodage plan s'adaptant à celui du dispositif. L'anode est fixée à une traversée analogue, dans un tube de verre s'adaptant au rodage en face du précédent.

Le chauffage du filament se fait à partir d'une batterie de 6 Volts. L'alimentation en tension des électrodes est fournie par des batteries de 400 Amp-h.

La figure 7 donne le schéma des connexions.

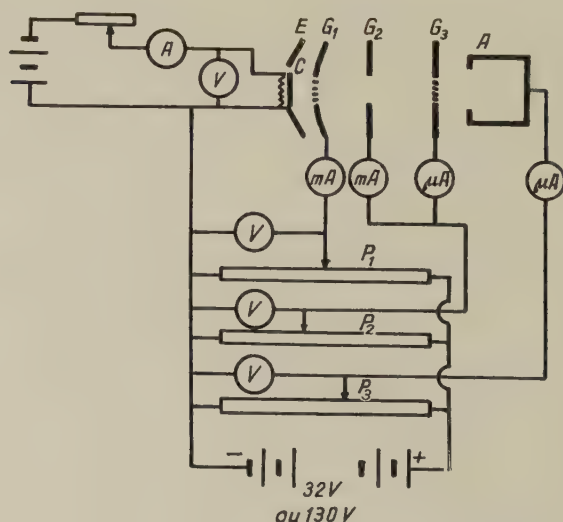


Fig. 7

Schéma des connexions du tube électronique

b) La *source du jet atomique* utilisée lors de l'excitation optique ne donnant pas une intensité de jet suffisante, nous avons placé dans le dispositif une source plus rapprochée. (Pour les considérations sur l'intensité du jet, voir chap. III et 1). Elle consiste en un récipient de pyrex (fig. 5 H), de 3 cm de long et 1 cm de diamètre intérieur, terminé par un canal de 1 cm de longueur et 0,25 cm de diamètre. L'enroulement de chauffage, en nichrome, est bobiné en couche simple sur le récipient, et en couche double sur le canal, la seconde couche étant bobinée en sens inverse de la première. Ainsi, le canal est plus chaud que le four, et on supprime, du même coup, le champ magnétique créé par l'enroulement de chauffage. Le tout est recouvert d'un mélange de silicate de soude et de talc, formant, après chauffage, un ciment isolant thermique. Après dégazage pendant un jour, le four recouvert du ciment a pu être placé à l'intérieur du dispositif, sans modifier le vide final par dégagement des gaz occlus.

Le four est alimenté par une batterie de 32 V et 1200 Amp.h. Le courant prend des valeurs entre 300 et 500 mA, correspondant à une variation de températures de 230° à 370°C.

L'extrémité du canal se trouve à 4,5 cm de l'endroit d'excitation; deux diaphragmes de verre définissent un jet de 5 mm de diamètre. Un anneau de teflon maintient en place le deuxième diaphragme, et empêche la diffusion latérale d'atomes du jet.

c) La *détection* s'effectue perpendiculairement au jet d'électrons (parallèle au champ magnétique) à l'aide de deux photomultiplicateurs. Le caractère de polarisation est différencié par deux polariseurs, dont les axes sont, respectivement, parallèle et perpendiculaire au champ magnétique. La transmission des prismes de Foucault étant trop faible, on utilise des feuilles polarisantes de Käsemann.

d) Les durées de vie plus courtes des états excités supérieurs nécessitent un champ de haute fréquence plus intense. Un *amplificateur* placé à la suite de l'oscillateur fournit la puissance désirée.

### III. Etudes préliminaires

#### 1. Intensité du jet atomique

L'intensité d'un jet atomique (nombre d'atomes par seconde), provenant d'une source suivie d'un canal, est donnée par l'expression (RAMSEY<sup>21</sup>):

$$I = 1,118 \cdot 10^{22} \frac{p A_s A_d}{l_0^2 \sqrt{MT}} \frac{8}{3} \frac{r}{l} \exp\left(-\frac{l'}{\lambda}\right)$$

où  $p$  — pression dans la source en mm de Hg

$A_s, A_d$  — l'ouverture de la source et la section du jet à l'endroit de détection, en cm<sup>2</sup>

$r$	— rayon du canal
$l$	— longueur du canal
$l_0$	— distance $A_s - A_d$ , en cm
$l'$	— distance entre l'ouverture du canal et $A_d$
$T$	— température en $^{\circ}K$
$M$	— masse atomique de l'élément
$\lambda$	— libre parcours moyen dans le tube

Dans notre dispositif (voir fig. 5), les dimensions sont :  
lors de l'excitation optique :

$$A_s = \pi/25 \text{ cm}^2, A_d = \pi/16 \text{ cm}^2, r = 0,2 \text{ cm}, l = 5 \text{ cm}, l_0 = 21 \text{ cm}$$

$$l' = 16 \text{ cm},$$

lors de l'excitation électronique :

$$A_s = 4,7 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^2, A_d = 12,6 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^2, r = 0,125 \text{ cm}, l_0 = 5,5 \text{ m}$$

$$l = 1 \text{ cm}.$$

Le terme  $\exp(-l'/\lambda)$  représentant la diffusion à l'intérieur du tube, est ici négligeable, vu le grand libre parcours moyen dans le tube.

Pour fixer le débit maximum du jet, il faut se rappeler que le régime d'écoulement change, lorsque le libre parcours moyen des atomes à l'intérieur de la source devient plus petit que les dimensions de l'ouverture de cette source (diamètre pour une ouverture circulaire, largeur pour une fente) :  $\lambda < 2r$ . Le jet atomique se transforme alors en un écoulement hydrodynamique. Cette condition détermine la pression maximum à l'intérieur de la source, donc la température maximum.

La température de la source peut, par conséquent, varier entre les limites suivantes : d'une part le minimum d'intensité du jet atomique détectable, d'autre part le maximum donné par la condition ci-dessus.

Dans notre dispositif ces limites correspondent à des pressions allant de  $10^{-3}$  à  $10^{-1}$  mm de Hg (DUSHMAN<sup>12</sup>) à l'intérieur de la source, et aux débits, à l'endroit d'observation, respectivement de  $3 \cdot 10^{11}$  à  $3 \cdot 10^{13}$  atomes/sec pour la source éloignée, et  $10^{13}$  à  $10^{15}$  atomes/sec pour la source rapprochée. Les densités correspondantes à ces débits sont, dans le premier cas, de  $5 \cdot 10^7$  atomes/cm<sup>3</sup> à  $5 \cdot 10^9$  atomes/cm<sup>3</sup>, dans le second cas de  $2 \cdot 10^9$  atomes/cm<sup>3</sup> à  $2 \cdot 10^{11}$  atomes/cm<sup>3</sup>. Ceci montre que le phénomène de diffusion multiple observé ailleurs (GUIOCHON, BLAMONT, BROSSEL<sup>23</sup>) ne doit pas apparaître ici.

Comparé à ces grandeurs, le nombre de molécules d'air pour une pression de  $10^{-5}$  mm de Hg, est de  $4 \cdot 10^{11}$  molécules/cm<sup>3</sup>.

## 2. Effet des molécules d'air

Les chiffres indiqués au paragraphe précédent montrent que les densités de molécules d'air et d'atomes du jet sont comparables. Dans le cas d'excitation par chocs électroniques, il faut donc s'attendre, à partir d'une certaine énergie d'électrons, à une émission, due à l'excitation des



molécules d'air. Nous avons effectivement observé une émission lorsqu'il n'y avait pas de jet. En localisant, à l'aide de filtres, les longueurs d'onde émises, on voit qu'elles coïncident avec des bandes d'émission de molécules d'azote, situées entre 3500 Å et 4600 Å, observées par d'autres auteurs (BERNARD<sup>24</sup>). Il semble que l'on ne puisse pas l'attribuer à de la fluorescence du verre sous l'effet d'impact électronique, la courbe de l'intensité lumineuse en fonction de l'énergie d'électrons présentant un maximum marqué, caractéristique des fonctions d'excitation des niveaux atomiques et moléculaires.

L'effet est montré figure 8. Il limite les possibilités d'observation sur le jet dans cette bande spectrale. Nous n'avons pas observé d'émission analogue dans d'autres domaines spectraux.

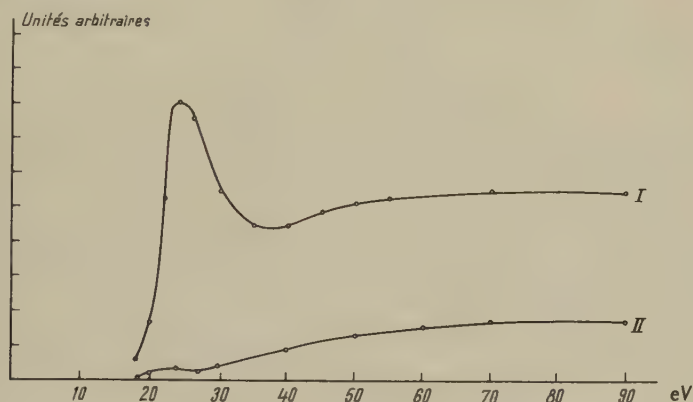


Fig. 8

Emission spectrale des molécules de l'air

I = Bande de 3000 à 4000 Å (filtres: UG5 + CuSO<sub>4</sub>)II = Bande de 4000 à 4600 Å (filtres: 2B + 34 A (Kodak) + CuSO<sub>4</sub>)

### 3. Charge d'espace

LARCHÉ<sup>25</sup>) a mesuré les fonctions d'excitation de plusieurs niveaux atomiques et ioniques du cadmium et du zinc. En comparant à ces résultats les seuils et les maxima des fonctions d'excitation que nous avons observés, nous avons constaté un décalage de l'énergie des électrons allant de 5 à 10 Volts environ, variable avec le courant et la tension électroniques (voir fig. 9). De pareils décalages, pouvant aller jusqu'à 30 Volts ont été observés par d'autres (MILATZ<sup>26</sup>). Ils sont généralement attribués à l'influence de la charge d'espace sur l'énergie des électrons à l'endroit d'observation. Pour compenser la charge d'espace, LARCHÉ (*loc. cit.*), à la suite de HANLE et SCHAFFERNICHT<sup>27</sup>) a utilisé la méthode dite des

champs doubles (Doppelfeldmethode). Elle consiste à porter la première grille à un potentiel élevé entraînant une forte ionisation des atomes. Les ions diffusent vers la région sans champ où ils compensent la charge d'espace électronique. La densité d'atomes dans leur cellule étant 500 à

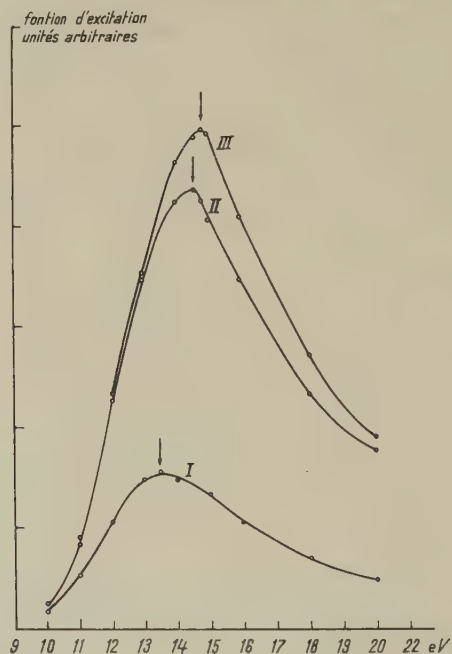


Fig. 9

Effet de la charge d'espace: déplacement du maximum de la fonction d'excitation

I: 40  $\mu$ A

II: 150  $\mu$ A

III: 250  $\mu$ A

Raie 5086 Å du cadmium

1000 fois supérieure à celle dans notre jet, la méthode ne semble pas applicable chez nous. Nous avons utilisé les résultats de LARCHÉ pour étalonner l'énergie des électrons.

#### 4. Filtrés

Lors de l'excitation par chocs électroniques, plusieurs raies pouvant être excitées simultanément, il est nécessaire de les isoler. Pour séparer les différentes régions spectrales, nous avons utilisé un certain nombre de filtres optiques.

Le filtre Schott UG5 permet d'isoler l'ultraviolet jusqu'à 4000 Å, en supprimant le visible jusqu'à 6500 Å.

Les solutions aqueuses de  $\text{CuSO}_4$  et  $\text{NiSO}_4$  absorbent dans le rouge à partir de 6000 Å. Ces filtres sont importants à cause de la forte émission de la cathode dans cette région. Lors de l'observation dans ce domaine spectral, il est nécessaire d'utiliser des filtres interférentiels.

Les filtres utilisés pour isoler des raies particulières sont décrits dans les résultats.

Les tables LANDOLT-BÖRNSTEIN<sup>28)</sup> fournissent une liste très complète de filtres.

#### IV. Résultats

Les grandeurs mesurées directement sont le courant magnétisant dans les bobines de Helmholtz, et les déviations du galvanomètre, proportionnelles à la variation du taux de polarisation de la lumière réémise. Les courbes de résonance sont relevées point par point.

##### 1. Cadmium atomique

##### A. Excitation optique de l'état

$5^3P_1$ , à l'aide de la raie d'intercombinaison 3261 Å ( $5^1S_0 - 5^3P_1$ )

a) Rapport des facteurs de Landé de l'état  $5^3P_1$ , isotopes pairs et impairs.

Le rapport des facteurs de Landé,  $g(J=1)_{\text{pairs}}$  à  $g(F=3/2)_{\text{impairs}}$ , étant égal à l'inverse du rapport des courants à la résonance, la mesure de ces courants:  $180,4 \pm 0,2$  mA pour les isotopes pairs, et  $270,25 \pm 0,5$  mA pour le niveau  $F=3/2$  d'isotopes impairs ( $7,939 \pm 0,008$  gauss par 1 Ampère), donne le rapport

$$\frac{g(J=1)_{\text{pair}}}{g(F=3/2)_{\text{impair}}} = 1,498 \pm 0,0045$$

Dans la limite de précision de nos mesures, l'atome ne s'écarte donc pas du modèle de Russell-Saunders donnant  $g_{\text{pair}} = 1,5$ ;  $g(F=3/2) = 1$ .

b) Détermination de la constante de structure hyperfine de l'état  $5^3P_1$ .

Les isotopes impairs du Cd sont:

$^{111}\text{Cd}$ , d'abondance naturelle 12,75%, spin nucléaire 1/2, moment magnétique  $\mu = -0,5922$  magnéton nucléaire.

$^{113}\text{Cd}$ , d'abondance naturelle 12,26%, spin nucléaire 1/2, moment magnétique  $\mu = -0,6195$  magnéton nucléaire.

Au chapitre 1 et 3b, nous avons établi une expression donnant la constante de structure hyperfine  $\lambda$ , en fonction de la fréquence de résonance et du rapport des courants à la résonance.

Le champ magnétique, d'environ 60 gauss, que nos bobines pouvaient produire sans dissipation thermique excessive, permet déjà une séparation des deux résonances dues aux transitions:

$$m_F = 3/2 \rightarrow m_F = 1/2, \quad \text{et} \quad m_F = -1/2 \rightarrow m_F = -3/2.$$

Le calcul montre que dans ces conditions, les résonances de deux isotopes, de moments magnétiques légèrement différents, ne sont pas résolues. En effet, les courants correspondants à une même résonance de deux isotopes impairs ne diffèrent que de  $0,30/_{00}$ . On obtient ainsi une valeur moyenne de la structure hyperfine.

A la fréquence de 80,84 Mc/sec correspondent les courants à la résonance

$$I_1 (3/2 \rightarrow 1/2) = 7,284 \text{ A}$$

$$I_2 (-1/2 \rightarrow -3/2) = 7,195 \text{ A}$$

mesurés à  $10/_{00}$ . (1 Ampère  $\rightarrow 7,939 \pm 0,008$  gauss).

On en tire

$$\lambda = 4360 \pm 90 \text{ Mc/sec}$$

Les mesures antérieures (spectroscopiques) de structure hyperfine, faites dans les années 1927 et 1931, donnent:

$$3/2 \lambda = 0,206 \text{ cm}^{-1} = 6180 \text{ Mc/sec} \quad (\text{A. SCHRAMMEN}^{29})$$

$$\text{et } = 0,221 \text{ cm}^{-1} = 6610 \text{ Mc/sec} \quad (\text{H. SCHÜLER et J. E. KEYSTON}^{30})$$

(notre valeur  $3/2 \lambda = 6530 \pm 135 \text{ Mc/sec}$ ).

c) Détermination de la *durée de vie* de l'état  $5^3P_1$  des isotopes pairs.

Le réseau de courbes de résonance, prises avec la puissance du champ de haute fréquence comme paramètre, donne  $(\Delta\omega)^2$  en fonction de  $(\gamma H_1 T_e)^2$  ( $\Delta\omega$  — largeur des courbes à la demi-hauteur).

$$\text{La droite} \quad (\Delta\omega)^2 = \frac{4}{T_e} (1 + 5,8 (\gamma H_1 T_e)^2)$$

(voir chap. 1 et 3c) permet de déterminer la durée de vie  $T_e$ , simultanément à partir de l'ordonnée à l'origine, et de la pente de la droite (fig. 10).

La valeur moyenne tirée des mesures donne, pour la durée de vie de l'état  $5^3P_1$  du cadmium:

$$T_e = (2,18 \pm 0,07) \cdot 10^{-6} \text{ sec}$$

Les résultats des mesures antérieures de  $T_e$  sont:

Auteur	Méthode	$T_e$
SOLEILLET <sup>31</sup> ) 1927, 1928, 1933	dépolarisation de la raie de résonance en fonction du champ magnétique méthode de Dunoyer	$2 \cdot 10^{-6} \text{ sec}$ $2,45 \cdot 10^{-6}$
KOENIG & ELLETT <sup>32</sup> ) 1931, 1932	méthode de Dunoyer	$2,5 \cdot 10^{-6}$
KUHN <sup>33</sup> ) 1926	magnétorotation	$2,5 \cdot 10^{-6}$
WEBB & MESSENGER <sup>34</sup> ) 1944	chocs électroniques avec tension modulée	$2,14 \cdot 10^{-6}$ à 3%

Il nous semble que les trois premières méthodes ne pouvaient donner qu'une précision très médiocre. C'est la dernière valeur de  $T_e$  qui doit

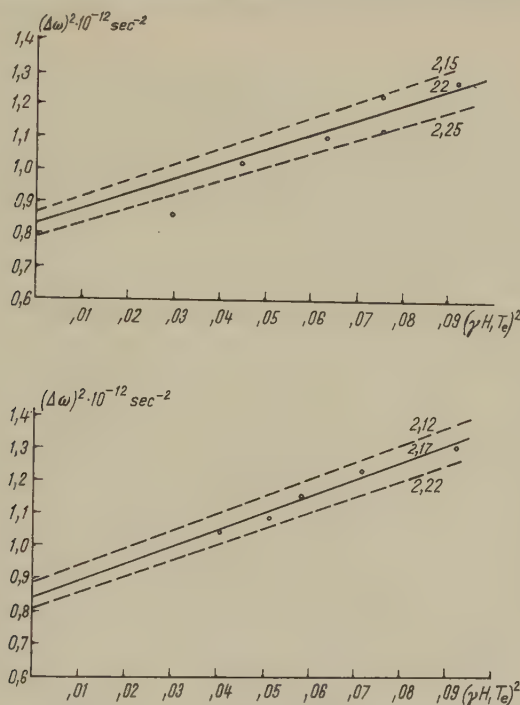


Fig. 10

Durée de vie de l'état  $5^3P_1$  du cadmium

être la plus exacte. C'est également celle qui correspond à notre valeur, aux erreurs de mesure près.

### B. Excitation par chocs électroniques

#### a) Etat $5^3P_1$ des isotopes pairs.

Cet état est étudié sur la transition  $5^3P_1 - 5^1S_0$ , de 3261 Å, isolée à l'aide des filtres UG5 Schott, et de la solution aqueuse de  $\text{NiSO}_4$ , cette dernière servant à absorber le rouge et les bandes des molécules d'azote. L'intensité de la raie 3261 Å est de dix à cent fois plus élevée que celle des autres raies.

La durée de vie ayant été déterminée par la méthode optique donnant davantage de précision, nous ne l'avons pas reprise ici, et nous nous sommes limités à mesurer le taux de polarisation en fonction de l'énergie des électrons, comparé à la fonction d'excitation. Le taux de polarisation est défini par

$$\phi = \frac{I_{\pi} - I_{\sigma}}{I_{\pi} + I_{\sigma}}$$



où  $I_\pi$ ,  $I_\sigma$  sont, respectivement, l'intensité de la lumière polarisée linéairement et circulairement, par rapport à la direction du jet d'électrons. Notre dispositif permet d'obtenir  $p$ , par

$$p = \frac{R}{I_\pi \pm R}$$

où  $R$  est la grandeur de la résonance saturée, et  $I_\pi$  l'intensité de la lumière polarisée linéairement. On prend le signe + ou - de manière à avoir toujours l'intensité lumineuse pour la dépolarisation maximum.

Les résultats sont donnés figure 11. Le courant électronique était de  $50 \mu\text{A}$ .

Parmi les raies que nous avons observées, elle est la seule à présenter un taux de polarisation négatif. Ce taux ne s'inverse pas jusqu'aux

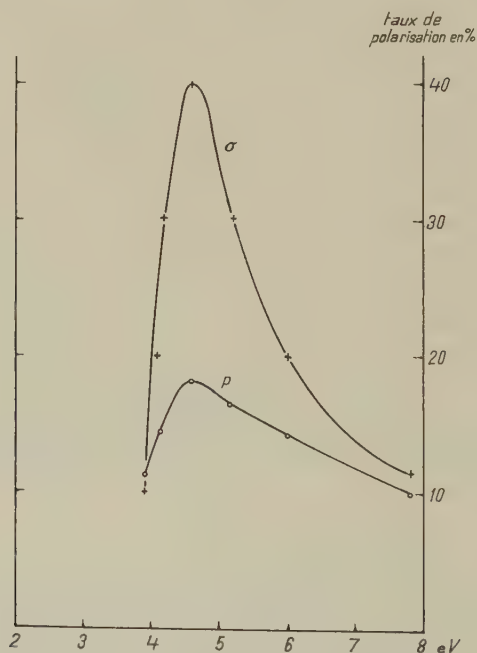


Fig. 11

Fonction d'excitation  $\sigma$  (unités arbitraires) et taux de polarisation de l'état  $5^3P_1$  du Cd

énergies de 100 V, contrairement au cas des raies de Hg, observées par SKINNER et APPELYARD<sup>15)</sup>, où il y a généralement inversion aux énergies d'environ 80 V. La résonance observée sur l'état hyperfin  $F = 3/2$  des isotopes impairs, donne aussi un  $p$  négatif. SKINNER et APPELYARD (*loc. cit.*) ont observé également un taux négatif sur la raie correspondante

du mercure,  $6^3P_1 - 6^1S_0$ , de 2537 Å. Comme remarqué au chap. 1 et 2, BETHE et OPPENHEIMER ont tenté une interprétation théorique de ce taux de polarisation négatif, par l'échange de spin.

#### b) Etat $6^1D_2$

Cet état est étudié sur la transition  $6^1D_2 - 5^1P_1$  de 4663 Å. Le courant d'électrons était de 1,16 mA à 30 V (sans correction pour la charge d'espace). Nous avons isolé cette raie, soit à l'aide d'un filtre interférentiel, soit par une combinaison de filtres 2B Kodak + BG12 Schott qui donne une intensité supérieure à celle du filtre interférentiel. Aucune de ces combinaisons de filtres ne permet d'éliminer complètement la raie 4678 Å,  $6^3S_1 - 5^3P_0$ , du triplet visible. Pour identifier à quel niveau correspond la résonance observée, on utilise les critères suivants: le facteur de Landé  $g$  du niveau, tiré de l'emplacement de la résonance est 1, et correspond donc à un niveau singulet. La fonction d'excitation des états triplets passe par un maximum pointu (8 V pour l'état  $6^3S_1$ , d'après LARCHÉ), tandis que les fonctions d'excitation des niveaux singulets présentent un plateau jusque vers des tensions plus élevées (supérieures à 30 V), où les fonctions d'excitation du triplet auront décliné d'un facteur 10 environ. On conclut que cette résonance est observée sur la raie 4663 Å et non pas sur 4678 Å. La hauteur de la résonance, relativement au signal, permet de conclure que la résonance a lieu directement sur le niveau  $6^1D_2$ , et non pas en cascade sur un niveau supérieur.

Le taux de polarisation observé est positif, comme le prédit la théorie.

Comme nous l'avons dit au chap. 1, paragraphe 3c, lorsque les signaux d'émission sont trop faibles pour permettre une mesure de la demi-largeur de la raie de résonance, on peut déterminer les durées de vie des états à partir de la mesure des hauteurs de résonances en fonction de la puissance H. F. Toutefois, cette méthode n'est applicable que si l'intensité lumineuse émise ne varie pas avec la variation de la puissance H. F. Dans les résultats présentés ci-dessous, cette variation est inférieure aux autres erreurs, ce qui justifie l'emploi de la méthode.

Les mesures de hauteur des résonances  $B$ , en fonction du champ  $H_1$  permettent de tracer le graphique  $H_1^2/B$  en fonction de  $H_1^2$  (fig. 12).

Le développement donné dans l'Annexe II, pour  $J = 2$ , fournit l'expression :

$$\frac{H_1^2}{B} = K (1 + 13,6 (\gamma H_1 T_e)^2)$$

lorsqu'on égalise les populations de tous les sous-niveaux. C'est la partie rectiligne de la courbe qui correspond à cette expression. Le développement ayant été fait pour  $q^2$  petit, nous avons vérifié que la valeur maximum de  $q^2 = (\gamma H_1 T_e)^2$  tirée du graphique est de 0,125, ce qui n'entraîne sur  $B$ , et par conséquent sur  $T_e$ , qu'une erreur de 1,5%.

On en déduit la valeur relative de la durée de vie de cet état, par rapport à celle de  $5^3P_1$ :

$$T_{e6^1D_2} = 0,099 T_{e5^3P_1} = (2,1 \pm 0,2) \cdot 10^{-7} \text{ sec}$$

L'erreur est due partiellement à l'indétermination du facteur  $n$  (soit 13,6 soit 16) – 4%, et partiellement aux erreurs expérimentales (3% sur les mesures, 3% sur la valeur de  $5^3P_1$ ).

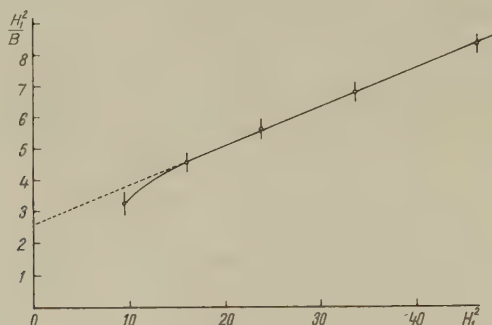


Fig. 12

Détermination du facteur  $(\gamma H_1 T_e)^2$  de l'état  $6^1D_2$  du Cd

$$T_e = (2,1 \pm 0,2) \cdot 10^{-7} \text{ sec}$$

#### c) Etat $4^3F_4$ .

Energie des électrons 18,5 V, avec un courant de 780  $\mu$ A. On isole les raies 3611–3613–3614 Å, transitions  $5^3D_{1,2,3} - 5^3P_2$ , à l'aide des filtres UG5 Schott, et d'une solution aqueuse d'iodure de 2,7 diméthyl-3,6 diazacyclohepta-1,6 diène, à la concentration de 20 mg par 100 cm<sup>3</sup> (KASHA<sup>35</sup>). Ce filtre présente un front très raide entre 3400 Å et 3500 Å, et permet d'éliminer, complètement, la raie de résonance, 3261 Å, malgré un rapport d'intensité très défavorable entre 3261 Å et 3600 Å. La précision des mesures dans ce domaine est limitée par l'apparition des bandes de l'azote.

La résonance observée sur ces longueurs d'ondes donne un facteur de Landé  $g$  qui ne correspond à aucun des niveaux  $3D_{1,2,3}$ . Ce facteur  $g = 1,25$  correspond à un niveau  $3F_4$ . Ce niveau n'alimente que le niveau  $3D_3$ ; or, parmi les transitions  $5^3D_{1,2,3} - 5^3P_2$ , la transition  $5^3D_3 - 5^3P_2$  (3611 Å) est la plus intense. De plus, la hauteur maximum de la résonance est petite, par rapport au signal total; on en conclut à une résonance en cascade, analogue à celle observée dans le mercure par PEBAY-PEYROULA<sup>4</sup>).

Les sens de la résonance montre un taux de polarisation positif, observé sur la raie  $5^3D_3 - 5^3P_2$  de 3611 Å. On peut en conclure le taux de polarisation positif du niveau  $3F_4$  (niveaux magnétiques centraux plus peuplés que les extrêmes).

A partir des mesures de hauteur de résonance  $B$ , en fonction du champ  $H_1$ , on tire  $H_1^2/B$  en fonction de  $H_1^2$ , donné figure 13.

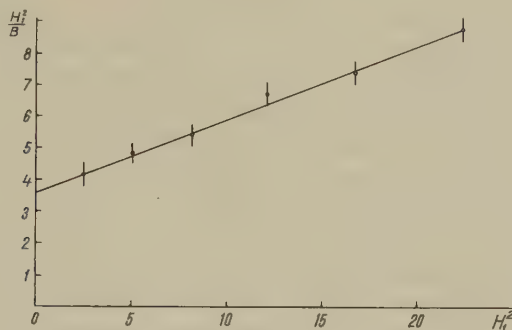


Fig. 13

Détermination du facteur  $(\gamma H_1 T_e)^2$  de l'état  $4\ ^3F_4$  du Cd

$$T_e = (1,3 \pm 0,1) \cdot 10^{-7} \text{ sec}$$

Le développement pour  $\varrho^2 = (\gamma H_1 T_e)^2$  petit, donné dans l'Annexe II, pour  $J = 4$ , fournit les deux valeurs limites:

$$H_1^2/B = K (1 + 13,11 (\gamma H_1 T_e)^2)$$

lorsque seuls les niveaux adjacents au niveau central,  $m = 0$ , sont peuplés à la résonance

$$H_1^2/B = K (1 + 15,79 (\gamma H_1 T_e)^2)$$

lorsqu'on égalise les populations des 9 sous-niveaux.

Les valeurs de  $\varrho^2 = (\gamma H_1 T_e)^2$  utilisées sont petites ( $\approx 0,04$ ), ce qui justifie le développement.

La valeur relative de la durée de vie de l'état  $5\ ^3F_4$ , par rapport à celle de  $5\ ^3P_1$  est alors:

$$T_{5\ ^3F_4} = 0,059 T_{5\ ^3P_1} = (1,3 \pm 0,1) \cdot 10^{-7} \text{ sec}$$

L'erreur est due essentiellement à l'indétermination du facteur  $n$  (soit 13,11, soit 15,79).

d) Essai sur le triplet visible  $6^3S_1 - 5^3P_{0,1,2}$ , 4678–4800–5086 Å.

Un filtre interférentiel nous a permis d'isoler la raie 4678 Å; d'après le calcul, cette raie est la plus sensible aux variations de la polarisation du niveau  $6^3S_1$ . Nous n'avons observé de résonances, ni directement sur l'état  $6^3S_1$  ( $g = 2$ ), ni en cascade provenant des niveaux  $6^3P_{0,1,2}$  ( $g = 1,5$ ), comme l'avait observé PEBAY-PEYROULA (*loc. cit.*) sur le Hg. Ceci est dû à l'intensité très faible du signal.

## 2. Zinc atomique

a) Etat  $4\ ^3P_1$ , transition  $4\ ^3P_1 - 4\ ^1S_0$ , 3076 Å.

Le zinc étant un élément plus léger que le mercure et le cadmium, le modèle de Russell-Saunders représente mieux les configurations électroniques, dans le cas du zinc, que dans celui de deux autres atomes. La probabilité d'émission de la raie d'intercombinaison entre le système singulet et triplet est donc plus faible, et la durée de vie de l'état  $4\ ^3P_1$  plus longue. Les diverses mesures de cette durée de vie (SOLEILLET, BRUCK<sup>36)</sup>) donnent comme ordre de grandeur  $3 \cdot 10^{-5}$  sec, ce qui signifie une demi-largeur naturelle de 10 kilocycles. Une telle demi-largeur est très difficile à mesurer avec précision, les perturbations extérieures élargissant très facilement la raie. Une mesure faite sur la raie 3076 Å, excitée par chocs électroniques, nous a donné une valeur inférieure que nous attribuons à l'élargissement de la raie par les inhomogénéités du champ. Il est possible que l'excitation optique permette d'obtenir une valeur plus précise. Toutefois, la méthode que nous utilisons est surtout appropriée pour des mesures de durées de vie allant de  $5 \cdot 10^{-6}$  à  $10^{-7}$  sec, et non pas pour des durées de vie plus longues pour lesquelles on connaît des méthodes plus adéquates.

Comme dans le cas des raies d'intercombinaison  $^3P_1 - ^1S_0$  du cadmium et du mercure, le taux de polarisation

$$p = \frac{I_{\pi} - I_{\sigma}}{I_{\pi} + I_{\sigma}}$$

de cette raie est aussi négatif.

La figure 14 donne le taux de polarisation en fonction de l'énergie des électrons, corrigée d'après les valeurs de LARCHÉ<sup>25)</sup>.

La comparaison entre les résultats relatifs au cadmium et au zinc conduit aux remarques suivantes:

Les deux taux passent par un maximum aigû pour des énergies situées près du seuil d'excitation et décroissent rapidement ensuite. Ils correspondent en cela aux mesures de SKINNER et APPLEYARD (*loc. cit.*) sur la raie 2537 Å de Hg. Par contre, tandis que le taux de Zn a son maximum avant celui de la fonction d'excitation et qu'il s'élève à plus de 40%, celui de Cd ne fait qu'environ 18% et coïncide avec le maximum de la fonction d'excitation. Il aurait été intéressant de pouvoir faire la même comparaison sur la raie 2537 Å du Hg. Malheureusement, le taux de polarisation et la fonction d'excitation n'ont pas été mesurés par les mêmes auteurs, et il existe probablement un décalage entre les énergies d'électrons dans ces différentes mesures (charge d'espace, potentiel de contact) qui rendrait la comparaison aléatoire.

b) Etat  $5\ ^1D_2$ , transition  $5\ ^1D_2 - 4\ ^1P_1$ , 4630 Å.

Energie d'électrons 26 V, avec un courant de 1,1 mA.



Les filtres utilisés pour isoler cette raie sont 2B + 34A Kodak +  $\text{CuSO}_4$ , ou un filtre interférentiel. Le filtre interférentiel permet de bien isoler la raie spectrale sur laquelle on fait la résonance; l'autre combinai-

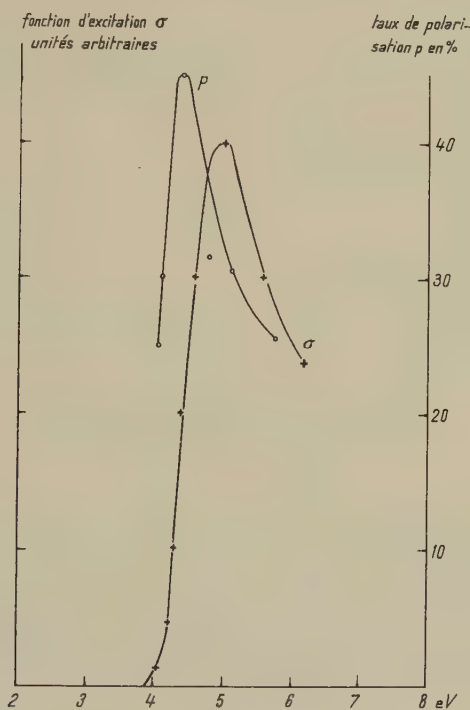


Fig. 14

Fonction d'excitation et taux de polarisation de l'état  $4^3P_1$  du Zn

son, de transmission plus élevée, permet de l'étudier d'une manière plus précise.

La raie étant très large, il n'a pas été possible de déterminer la valeur du facteur de Landé  $g$  avec précision. La seule autre raie optique pouvant être observée simultanément avec les filtres utilisés est la raie  $4680 \text{ \AA}$  du triplet visible,  $5^3S_1 - 4^3P_0$ . Ni la valeur de  $g$ , ni les énergies d'électrons ne correspondent à une résonance sur cette raie. Ainsi, la seule raie entrant en ligne de compte est celle de  $4630 \text{ \AA}$ , et, par analogie avec le cadmium, nous pensons que la résonance a lieu sur l'état  $5^1D_2$ .

La figure 15 donne la demi-largeur  $(\Delta\omega)^2 = f(H_1^2, T_e)$  en fonction de l'intensité du champ de haute fréquence. En extrapolant vers  $H_1$  nul, on obtient, à partir de l'ordonnée à l'origine,  $4/T_e^2$  (voir description de la

méthode, chap. 1 et 3c, où le coefficient 5,8 est remplacé par un coefficient inconnu  $\alpha$ ). On en déduit pour cet état une durée de vie:

$$T_e = (1,25 \pm 0,1) \cdot 10^{-7} \text{ sec}$$

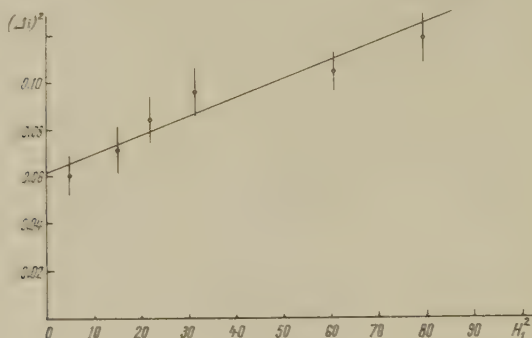


Fig. 15

Durée de vie de l'état  $5^1D_2$  du Zn

$$T_e = (1,25 \pm 0,1) \cdot 10^{-7} \text{ sec}$$

c) Essai sur le triplet visible  $5^3S_1 - 4^3P_{0,1,2}$ , 4680–4722–4811 Å.

Comme pour le cadmium, les tentatives d'observer une résonance sur une de ces longueurs d'onde n'ont pas eu de succès. Nous l'attribuons d'une part à une durée de vie trop courte de l'état  $5^3S_1$ , et, d'autre part, à la faible intensité des signaux, ne permettant pas d'observer une résonance en cascade à partir de  $5^3P$ .

### 3. Cadmium et zinc ionisés<sup>39)</sup>

Les potentiels d'ionisation sont 8,96 V pour le Cd, et 9,36 V pour le Zn. Au-dessus de ces énergies, on peut obtenir des niveaux excités ioniques.

Les configurations électroniques des états fondamentaux atomiques sont:

$$\text{Cadmium } 4d^{10} 5s^2 \quad \text{et} \quad \text{Zinc } 3d^{10} 4s^2$$

les configurations électroniques des états fondamentaux ioniques sont alors (fig. 16):

$$\text{Cd II } 4d^{10} 5s \quad \text{et} \quad \text{Zn II } 3d^{10} 4s$$

Parmi les états excités ioniques, on trouve des états de configuration:

$$4d^9 5s^2 \quad \text{ou} \quad 3d^9 4s^2$$

obtenus par arrachement d'un électron à la couche  $d$ . Ce sont les états  $^2D_{5/2}$  et  $^2D_{3/2}$  dont la structure fine est inversée. Les seuls niveaux d'énergie inférieure sont les états :

$^2P_{1/2}^0, ^2P_{3/2}^0$  :  $4d^{10}5p$  pour le Cd II,  $3d^{10}4p$  pour le Zn II

$^2S_{1/2}^0$  :  $4d^{10}5s$  pour le Cd II,  $3d^{10}4s$  pour le Zn II

La transition  $D \rightarrow S$  ( $\Delta l = 2$ ) étant interdite au premier ordre, les seules transitions  $\Delta l = 1$  possibles sont les transitions  $D \rightarrow P$  à deux

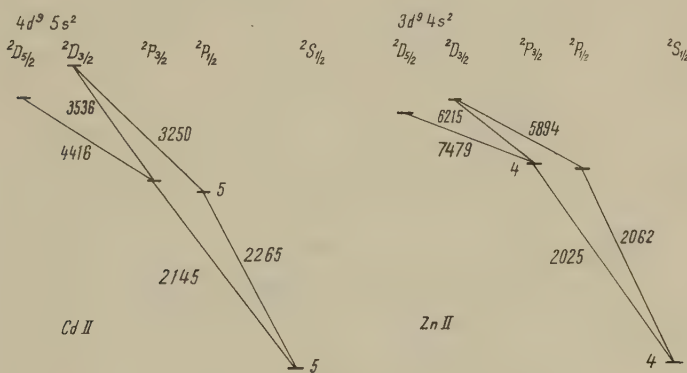


Fig. 16

Premiers niveaux d'énergie des ions

électrons  $d^9 s^2 \rightarrow d^{10} p$ . Ces transitions étant peu probables, les durées de vie des états  $d^9 s^2 \ ^2D$  seront relativement longues. Malgré ces durées de vie longues, on observe des raies intenses. Nous attribuons cette intensité à une grande section efficace d'ionisation de la couche  $d$ , ionisation qui crée directement le niveau excité.

Les longueurs d'onde correspondantes à ces transitions sont :

	pour le Cd II	pour le Zn II
$^2D_{5/2} - ^2P_{3/2}$	4416 Å	7479 Å
$^2D_{3/2} - ^2P_{3/2}$	3536 Å	6215 Å
$^2D_{3/2} - ^2P_{1/2}$	3250 Å	5894 Å

Nous avons observé la résonance sur la raie 4416 Å du Cd II, correspondant à l'état  $^2D_{5/2}$  de  $g = 6/5$ , et sur la raie 5894 Å du Zn II correspondant à l'état  $^2D_{3/2}$  de  $g = 4/5$ . La finesse des raies de résonance permet une détermination suffisamment précise des valeurs de  $g$ , qui permet à son tour d'attribuer avec certitude les résonances observées à ces états. On remarque ainsi que l'ionisation arrachant un électron de la couche  $d$ , entraîne une polarisation du «trou». Le signe du taux de polarisation est positif.

La figure 17 donne le taux de polarisation de la raie 5894 Å du Zn II ( $^2D_{3/2} - ^2P_{1/2}$ ), et de la raie 4416 Å du Cd II ( $^2D_{5/2} - ^2P_{3/2}$ ), comparé à leur fonction d'excitation. Ce taux présente un net maximum qui a lieu avant le maximum de la fonction d'excitation.

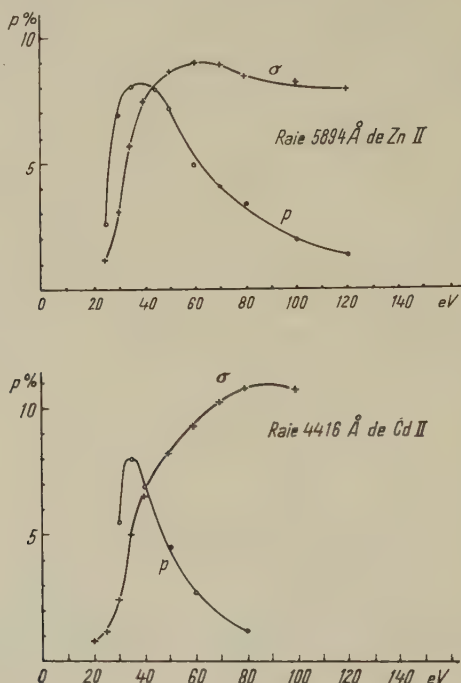


Fig. 17

Fonction d'excitation  $\sigma$  (unités arbitraires) et taux de polarisation  $p$  en %

Nous remarquons que le maximum de la fonction d'excitation de la raie 5894 Å du Zn II se situe, dans nos mesures, vers 60 V, alors que chez LARCHÉ il est à 80 V.

Les mesures des durées de vie de ces deux états ioniques ont été faites par la méthode de demi-largeurs (voir chap. 1 et 3c). Les figures 18 et 19 représentent  $(\Delta\omega)^2 = 4/T_e (1 + \alpha H_1^2)$ , les carrés des demi-largeurs en fonction du carré de l'amplitude du champ de haute fréquence. On en déduit les durées de vie:

$$\begin{array}{lll} \text{Cd II} & ^2D_{5/2} & T_e = (8,3 \pm 0,7) \cdot 10^{-7} \text{ sec} \\ \text{Zn II} & ^2D_{3/2} & T_e = (4,65 \pm 0,2) \cdot 10^{-7} \text{ sec} \end{array}$$

Nous remarquons que ces durées de vie sont relativement longues, les transitions permises correspondant à des durées de vie de l'ordre de  $10^{-8} \text{ sec} - 10^{-9} \text{ sec}$ .

On peut remarquer en passant, qu'un saut à un électron avec  $\Delta l = 2$  (transition quadrupolaire électrique) est  $10^6$  fois moins probable que la transition  $\Delta l = 1$  (dipolaire électrique), donc encore  $10^3$  fois moins probable que la transition à double saut d'électrons que nous avons observée.

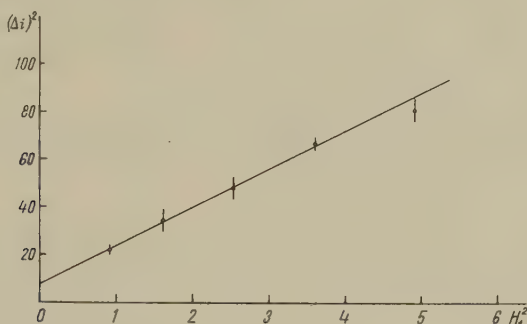


Fig. 18

Détermination de la durée de vie de l'état  $4 d^9 5 s^2 \ ^2D_{5/2}$  de Cd II

$$T_e = (8,3 \pm 0,7) \cdot 10^{-7} \text{ sec}$$

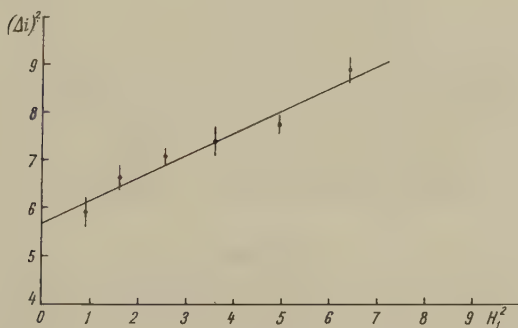


Fig. 19

Détermination de la durée de vie de l'état  $3 d^9 4 s^2 \ ^2D_{3/2}$  de Zn II

$$T_e = (4,65 \pm 0,2) \cdot 10^{-7} \text{ sec}$$

### Conclusion

Plus que dans la mesure de propriétés atomiques particulières du cadmium et du zinc, nous voyons l'intérêt du présent travail dans une recherche des possibilités d'application de la technique des jets et de la résonance magnétique à l'étude des niveaux atomiques. Jusqu'à présent, la résonance magnétique a été surtout appliquée à des vapeurs atomiques. Ces dernières sont toujours placées dans une enceinte évacuée et fermée, maintenue à température constante; tandis qu'un jet atomique est



formé à partir d'une source maintenue à une température beaucoup plus élevée que le reste de l'enceinte, elle-même constamment évacuée.

Passons en revue les avantages et les inconvénients de chacune de ces méthodes. La technique des jets est préférable lorsque l'on fait des mises au point entraînant de fréquentes modifications, et, de ce fait, des rentrées d'air, à l'intérieur d'un dispositif démontable. Le pompage continu permet de retrouver rapidement un vide suffisant. Une cellule exige un dispositif fermé, donc déjà mis au point.

La technique des jets est surtout le meilleur moyen d'investigation pour des éléments ayant une faible tension de vapeur, nécessitant un four chauffé à haute température.

Les limites d'application de la méthode des jets sont fixées par la faible densité d'atomes qui entraîne, d'une part, la faible intensité de lumière émise par les atomes, et, d'autre part, la perturbation introduite par les «gaz résiduels» (voir densités citées chap. III et 1). Les densités que l'on atteint dans les cellules sont 100 à 1000 fois plus élevées, de l'ordre de  $10^{13}$  atomes/cm<sup>3</sup>. Nous en concluons que pour étudier des niveaux excités supérieurs à ceux que nous avons pu observer, il faudrait travailler avec une vapeur atomique. Par contre, lorsque les chocs contre les parois deviennent importants (durées de vie très longues, états fondamentaux), les jets sont préférables aux vapeurs.

Un autre inconvénient de la méthode des jets, c'est la décroissance continue du signal lumineux que nous attribuons à la diminution du débit. De plus, les atomes se condensent sur des parties froides de l'appareillage, et peuvent se révaporer et modifier la tension de vapeur dans l'enceinte, lorsque la température des parois s'élève (dissipation de puissance H. F.).

La méthode des jets qui n'utilise qu'une faible proportion du matériel évaporé n'est pas, non plus, adéquate lorsque l'on ne dispose que d'une petite quantité de matériel onéreux (par exemple isotopes enrichis).

Une étude pour laquelle la méthode des jets est la plus adéquate est celle d'états métastables; on peut, en effet, séparer la région de production d'atomes métastables de la région de détection.

Les résultats obtenus sur le jet de Cd par la méthode optique permettent d'envisager l'étude de l'isotope radioactif Cd<sup>109</sup>, et éventuellement Cd<sup>107</sup>, en cellule, vu la faible quantité de matière nécessaire. L'activité totale sera faible et ne présentera pas de danger.

Nous tenons à remercier ici le professeur R. C. EXTERMANN du soutien efficace qu'il a accordé à ce travail et de l'intérêt qu'il lui a manifesté.

Nous remercions également le professeur G. J. BÉNÉ pour son intérêt constant et Dr. R. LACROIX pour les fructueuses discussions de questions théoriques.

Nos remerciements s'adressent aussi aux mécaniciens de l'Institut, ainsi qu'à messieurs P. OPITZ et C. H. NICHOLS, souffleurs de verre du CERN, qui ont contribué à la construction des appareils.

Ce travail a bénéficié de l'appui financier du Fonds National de la Recherche Scientifique.

#### ANNEXE I

Calcul des niveaux d'énergie des états hyperfins, cas  $J = 1$ ,  $I = 1/2$ .

L'hamiltonien exprimant l'action d'un champ magnétique extérieur sur la structure hyperfine d'un niveau atomique est

$$\mathfrak{H} = \lambda (I \cdot J) - g_J \frac{\mu_0}{h} (J \cdot H_0) - g_I \frac{\mu_0}{h} (I \cdot H_0)$$

(énergie en Mc/sec)

où  $g_J$ ,  $g_I$  sont les facteurs de Landé électronique et nucléaire et  $\lambda$  la constante de structure hyperfine.

Le cas qui nous intéresse est :

$$\text{état } {}^3P_1 (J = 1, g_J = 3/2), I = 1/2, \mu_I < 0$$

a) Atome en l'absence du champ magnétique

$$\mathfrak{H} = \lambda (I \cdot J)$$

$F = I + J$  est le bon nombre quantique.

Les deux valeurs en sont  $F = 3/2$ ,  $F = 1/2$ , avec, respectivement, les énergies

$$E = \frac{\lambda}{2} \text{ pour } F = 3/2$$

$$E = -\lambda \text{ pour } F = 1/2$$

( $\lambda$  négatif à cause de  $\mu_I$  négatif)

b) En présence d'un champ magnétique, et dans une représentation  $m_J, m_I$

$$\mathfrak{H} = \lambda (m_I \cdot m_J) - m_J g_J \mu_0 H_0 - m_I g_I \mu_0 H_0$$

$m_F = m_I + m_J$  est le bon nombre quantique.

Les éléments non diagonaux en  $m_F = m_I + m_J$  sont nuls. On diagonalise le matrice :

$$\langle m_I m_J | \mathfrak{H} | m_I m_J \rangle$$

1°  $m_F = \pm 3/2$ .

Les termes  $m_J = \pm 1$ ,  $m_I = \pm 1/2$  ( $m_F = \pm 3/2$ ) sont déjà diagonaux. D'où directement

$$E = \pm 3/2 \frac{\mu_0}{h} H_0 - 1/2 \lambda$$

$$2^{\circ} m_F = 1/2$$

$m_J = 1, m_I = 1/2$  et  $m_J = 0, m_I = 1/2$  forment le déterminant :

$$\begin{vmatrix} E & \lambda X \\ \lambda \bar{X} & E + \frac{\lambda}{2} + 3/2 \frac{\mu_0}{h} H_0 \end{vmatrix} = 0$$

Les termes non diagonaux sont donnés par la valeur de  $E$  pour  $H_0 = 0$

$$\begin{vmatrix} E & \lambda X \\ \lambda \bar{X} & E + \frac{\lambda}{2} \end{vmatrix} = 0$$

En résolvant ce déterminant :

$$E^2 + \frac{\lambda}{2} E - \lambda^2 X \bar{X} = 0$$

$$\text{d'où } E = 1/2 \left[ -\frac{\lambda}{2} \pm \sqrt{\frac{\lambda^2}{2} + 4 X \bar{X} \lambda^2} \right] = \left\{ \frac{\lambda}{2} \right\} \text{ vérifié pour } X \bar{X} = 1/2$$

En réintroduisant cette valeur dans le déterminant primitif, on trouve pour l'énergie :

$$E = 1/2 \left[ -\frac{\lambda}{2} - 3/2 \frac{\mu_0}{h} H_0 \pm \sqrt{\left( \frac{\lambda}{2} + 3/2 \frac{\mu_0}{h} H_0 \right)^2 + 2 \lambda^2} \right]$$

$$3^{\circ} m_F = -1/2$$

$m_J = -1, m_I = 1/2$  et  $m_J = 0, m_I = -1/2$  forment le déterminant

$$\begin{vmatrix} E & \lambda X \\ \lambda \bar{X} & E + \frac{\lambda}{2} - 3/2 \frac{\mu_0}{h} H_0 \end{vmatrix} = 0$$

Le même procédé donne pour  $X \bar{X} = 1/2$  et pour l'énergie :

$$E = 1/2 \left[ -\frac{\lambda}{2} + 3/2 \frac{\mu_0}{h} H_0 \pm \sqrt{\left( \frac{\lambda}{2} - 3/2 \frac{\mu_0}{h} H_0 \right)^2 + 2 \lambda^2} \right]$$

## ANNEXE II

Calculs relatifs à la détermination des durées de vie.

La loi de variation de la hauteur des résonances,  $B$ , étant connue pour le niveau  $^3P_1$  ( $J = 1, B = K (\gamma H_1 T_e)^2 / 1 + 4 (\gamma H_1 T_e)^2$ ), il s'agit de la déterminer pour les autres niveaux étudiés correspondants à des  $J$  différents.

L'expression connue de RABI-MAJORANA<sup>37)</sup> donnant la probabilité de trouver un système, de moment cinétique  $J$ , dans un sous-niveau magné-

tique  $m'$ , à l'instant  $t$ , lorsqu'il était dans le sous-niveau  $m$ , au temps  $t = 0$ , a la forme suivante:

$$P(J, m, m', t) = (\cos \alpha/2)^{4J} (J+m)! (J+m')! (J-m)! (J-m')! \\ \times \left[ \sum_{n=0}^{2J} \frac{(-1)^n \left(\operatorname{tg} \frac{\alpha}{2}\right)^{2n-m+m'}}{n! (n-m+m')! (J+m-n)! (J-m'-n)!} \right]^2$$

où

$$\sin^2 \frac{\alpha}{2} = \frac{1}{1+\delta^2} \sin^2 1/2 \sqrt{1+\delta^2} \tau$$

avec

$$\delta = \frac{\omega - \omega_0}{\gamma H_1} \quad \tau = \gamma H_1 t$$

$H_1$  est l'amplitude du champ de haute fréquence sous l'action duquel se fait la transition,  $\omega$  la fréquence de ce champ,  $\omega_0$ , la fréquence de Larmor du système.

La population des niveaux, partant la forme de la raie de résonance, s'obtient en intégrant:

$$B(H_1, T_e) = \int_0^\infty \frac{1}{T_e} e^{-\frac{t}{T_e}} P(J, m, m', t) dt$$

(BITTER et BROSSEL<sup>38</sup>).

Dans le cas de  $J > 1$ , la probabilité de transition de  $m$  à  $m+1$  n'est pas la même que celle de  $m+1$  à  $m+2$ . La forme de la raie, au lieu d'avoir une expression simple comme dans le cas  $J=1$ :

$$B = \frac{a \varrho^2}{1+b \varrho^2}$$

(où  $\varrho^2 = (g H_1 T_e)^2$ ), devient:

$$B = \alpha \frac{a \varrho^2}{1+b \varrho^2} + \beta \frac{c \varrho^2}{1+d \varrho^2}$$

+ d'autres termes analogues.

$\alpha$  et  $\beta$ , donnant la valeur relative des populations, sont inconnus lors des chocs électroniques. On cherche à ramener cette expression de  $B$  à une forme simple:

$$B = \frac{m \varrho^2}{1+n \varrho^2}$$

par un développement pour  $\varrho^2$  petit, avec  $\alpha$  et  $\beta$  comme paramètres. Dans le cas de deux termes:

$$m = \alpha a + \beta c \quad n = \frac{\alpha ab + \beta cd}{\alpha a + \beta c}$$

Le graphique  $H_1^2/B = K (1+n \varrho^2)$  en fonction de  $H_1^2$ , n'est pas une droite,  $n$  étant fonction de  $\alpha$  et  $\beta$ , qui varient avec les puissances de haute fréquence. En effet, il semble correct d'admettre - les chocs électro-

niques,  $\Delta m = 0$ , peuplant surtout le niveau central – que les faibles valeurs du champ de haute fréquence ( $\varrho$  petit) induisent principalement des transitions vers des niveaux contigus au niveau central ( $\alpha \approx 1$ ,  $\beta \approx 0$ ). A la saturation de la résonance, tous les niveaux étant également peuplés, les facteurs  $\alpha$  et  $\beta$  doivent être sensiblement égaux.  $n$  varie donc entre deux valeurs extrêmes:

$$n = b \quad \text{et} \quad n = \frac{ab + cd}{a + c}$$

Les calculs montrent que  $n$  ne varie que faiblement entre ces deux limites extrêmes, et, ainsi, l'erreur commise en assimilant la courbe  $H_1^2/B$  à une droite est du même ordre de grandeur que les erreurs de mesures. Pour déterminer  $(\gamma H_1 T_e)^2$ , on est donc ramené au même cas que pour l'état  $^3P_1$ , avec des facteurs  $n$  à la place du 4.

A partir de:

$$\frac{H_1^2}{B} = K (1 + n (\gamma H_1 T_e)^2)$$

on tire:  $H_1^2/B$  ( $H_1 = 0$ ), par extrapolation vers  $H_1 \rightarrow 0$ , et de là:

$$(\gamma H_1 T_e)^2 = \frac{\left(\frac{H_1^2}{B}\right) - \left(\frac{H_1^2}{B}\right)_{H_1=0}}{n \left(\frac{H_1^2}{B}\right)_{H_1=0}}$$

Cas particuliers

$$J = 2 \text{ a) } P(2, 1, 0, t) = 3! (\cos^2 \alpha/2 \sin^2 \alpha/2 (\sin^2 \alpha/2 - \cos^2 \alpha/2)^2$$

$$\text{b) } P(2, 2, 1, t) = 4 \cos^6 \alpha/2 \sin^2 \alpha/2.$$

L'intégration donne:

$$\text{a) } B_{1 \rightarrow 0} = \frac{3 \varrho^2}{1 + 16 \varrho^2} \quad \varrho^2 = (\gamma H_1 T_e)^2$$

$$\text{b) } B_{2 \rightarrow 1} = \frac{1}{32} \left( 5 + \frac{4}{1 + \varrho^2} - \frac{4}{1 + 4 \varrho^2} - \frac{4}{1 + 9 \varrho^2} - \frac{1}{1 + 16 \varrho^2} \right)$$

$$B_{\text{total}} = \alpha B_{1 \rightarrow 0} + \beta B_{2 \rightarrow 1}$$

Le développement pour  $\varrho^2$  petit donne à la limite  $\alpha = 1$ ,  $\beta = 0$

$$n = 16, \quad B_{\text{tot}} = B_{1 \rightarrow 0} = \frac{3 \varrho^2}{1 + 16 \varrho^2}$$

et, à la limite  $\alpha = \beta = 1/2$

$$n = 13,6, \quad B_{\text{tot}} = \frac{2,5 \varrho^2}{1 + 13,6 \varrho^2}$$



$$J = 4$$

$$a) P(4, 1, 0, t) = 20 \cos^{14} \frac{\alpha}{2} \sin^2 \frac{\alpha}{2} \left( \operatorname{tg}^6 \frac{\alpha}{2} - 6 \operatorname{tg}^4 \frac{\alpha}{2} + 6 \operatorname{tg}^2 \frac{\alpha}{2} - 1 \right)^2$$

$$b) P(4, 2, 1, t) = 18 \cos^{14} \frac{\alpha}{2} \sin^2 \frac{\alpha}{2} \left( -\frac{10}{3} \operatorname{tg}^4 \frac{\alpha}{2} + 5 \operatorname{tg}^2 \frac{\alpha}{2} - 1 \right)^2$$

$$c) P(4, 3, 2, t) = 14 \cos^{14} \frac{\alpha}{2} \sin^2 \frac{\alpha}{2} \left( 3 \operatorname{tg}^2 \frac{\alpha}{2} - 1 \right)^2$$

$$d) P(4, 4, 3, t) = 8 \left( \cos^{14} \frac{\alpha}{2} - \cos^{16} \frac{\alpha}{2} \right)$$

L'intégration donne:

$$a) B_{1 \rightarrow 0} = \frac{5}{2048} \left( -\frac{49}{1+64 \varrho^2} - \frac{28}{1+36 \varrho^2} - \frac{4}{1+16 \varrho^2} + \frac{28}{1+4 \varrho^2} + 53 \right)$$

$$B_{2 \rightarrow 1} = \frac{1}{1152} \left( -\frac{49}{1+64 \varrho^2} - \frac{98}{1+49 \varrho^2} - \frac{21}{1+36 \varrho^2} - \frac{14}{1+25 \varrho^2} - \right. \\ \left. - \frac{46}{1+16 \varrho^2} + \frac{54}{1+9 \varrho^2} + \frac{5}{1+4 \varrho^2} + \frac{58}{1+\varrho^2} + 111 \right)$$

$$B_{3 \rightarrow 2} = \frac{1}{1024} \left( -\frac{1}{1+64 \varrho^2} - \frac{6}{1+49 \varrho^2} - \frac{13}{1+36 \varrho^2} - \frac{10}{1+25 \varrho^2} + \right. \\ \left. + \frac{2}{1+16 \varrho^2} + \frac{2}{1+9 \varrho^2} - \frac{3}{1+4 \varrho^2} + \frac{14}{1+\varrho^2} + 15 \right)$$

$$B_{4 \rightarrow 3} = \frac{1}{8192} \left( -\frac{2}{1+64 \varrho^2} - \frac{24}{1+49 \varrho^2} - \frac{128}{1+36 \varrho^2} - \frac{392}{1+25 \varrho^2} - \right. \\ \left. - \frac{728}{1+16 \varrho^2} - \frac{728}{1+9 \varrho^2} + \frac{1144}{1+\varrho^2} + 858 \right)$$

$$B_{\text{total}} = \alpha B_{1 \rightarrow 0} + \beta B_{2 \rightarrow 1} + \gamma B_{3 \rightarrow 2} + \delta B_{4 \rightarrow 3}$$

Le développement pour  $\varrho^2$  petit donne:

à la limite  $\alpha = 1, \beta = \gamma = \delta = 0$

$$n = 13,11 \quad B_{\text{tot}} = B_{1 \rightarrow 0} = \frac{10 \varrho^2}{1+13,11 \varrho^2}$$

à la limite  $\alpha = \beta = \gamma = \delta = 1/4$

$$n = 15,79 \quad B_{\text{tot}} = \frac{5,75 \varrho^2}{1+15,79 \varrho^2}$$

### Bibliographie

- 1) BROSSEL, J., et BITTER, F., Phys. Rev. 86, 308 (1952); BROSSEL, J., Thèse, Paris 1951.
- 2) DEHMELT, H. G., Phys. Rev. 103, 1125 (1956).
- 3) SAGALYN, P. L., MELISSINOS, A. C. et BITTER, F., Phys. Rev. 109, 375 (1958).
- 4) PEBAY-PEYROULA, J. C., Thèse, Paris 1959.
- 5) WINTER, J., Diplôme E.N.S. et J. Phys. Rad. 13, 668 (1952).

- 6) CAGNAC, B., Diplôme E.N.S. 1953 et J. Phys. Rad. 15, 8 (1954).
- 7) HAWKINS, W. B. et DICKE, R. H., Phys. Rev. 97, 1008 (1953); HAWKINS, W. B., Phys. Rev. 96, 532 (1954); 98, 478 (1955), Thèse, Princeton 1954.
- 8) SAGALYN, P. L., Phys. Rev. 94, 885 (1954).
- 9) DEHMELT, H. G., Phys. Rev. 105, 1487 et 1924 (1957); 109, 381 (1958).
- 10) ALTHOFF, K. et KRÜGER, H., Naturwissenschaften 41, 368 (1954); ALTHOFF, K., Z. Phys. 141, 33 (1955).
- 11) BUCKA, H., Naturwissensch. 43, 371 (1956).
- 12) SKALINSKI, T., J. Phys. Rad. 19, 890 (1958).
- 13) KRUGER, H. et MEYER-BERKHOUT, U., Naturwissensch. 42, 94 (1955); MEYER-BERKHOUT, U., Z. f. Phys. 141, 185 (1955).
- 14) SKILIMAN, T.-L. et BENDER, P. L., J. of Geophysical Research 63, 513 (1958).
- 15) SKINNER, H. W. B., Proc. Roy. Soc. 172, 642 (1926); SKINNER, H. W. B. et APPELYARD, E. T. S., Proc. Roy. Soc. 177, 224 (1927-1928).
- 16) BETHE, H., Handbuch der Physik, Vol. 24/1, p. 508, Springer, 1933; BETHE, H., Ann. d. Phys. 5, 325 (1930).
- 17) OPPENHEIMER, J. R., Z. Phys. 43, 27 (1927).
- 18) KASTLER, A., Physica 12, 619 (1946); J. Phys. Rad. 11, 255 (1950); Physica 17, 191 (1951); Proc. Phys. Soc. 67A, 853 (1954).
- 19) ESPE et KNOLL, Werkstoffkunde der Hochvakuumtechnik, Berlin, Springer, 1936.
- 20) PIERCE, J. R., J. Appl. Phys. 11, 548 (1940).
- 21) RAMSEY, N. F., Molecular Beams, p. 14 et 16, Oxford, Clarendon Press, 1956.
- 22) DUSHMAN, S., Scientific Foundations of Vacuum Technique, p. 747; Wiley-Chapman & Hall, 1955.
- 23) GUIOCHON, A. M., BLAMONT, J. E. et BROUSSEL, J., J. Phys. Rad. 18, 99 (1957).
- 24) BERNARD, R., C.R.A.S. 205, 793 (1937).
- 25) LARCHE, K., Z. Phys. 67, 440 (1931).
- 26) MILATZ, J. M. W. et ORNSTEIN, L. S., Physica 2, 355 (1935).
- 27) HANLE, W., Z. Phys. 56, 94 (1929); SCHAFFERNICHT, W., Z. Phys. 62, 106 (1930).
- 28) LANDOLT-BORNSTEIN, Zahlenwerte und Funktionen, Vol. 4/3, Springer, 1957.
- 29) SCHRAMMEN, A., Ann. d. Phys. 83, 1161 (1927); 87, 638 (1928).
- 30) SHULER, H. et KEYSTON, J. E., Z. Phys. 67, 433 (1931).
- 31) SOLEILLET, P., C.R.A.S. 185, 198 (1927); 187, 212 (1928); 196, 991 (1933).
- 32) KOENIG, H. D. et ELLETT, A., Phys. Rev. 37, 1685 (1931); 39, 576 (1932).
- 33) KUHN, W., Habilitationsschrift, Zurich 1926.
- 34) WEBB, W. A. et MESSENGER, H. A., Phys. Rev. 66, 77 (1944).
- 35) KASHA, M., J. Opt. Soc. Amer. 38, 929 (1948).
- 36) SOLEILLET, P., C.R.A.S. 187, 723 (1928); BRUCK, H., Publ. Lab. Phys. E.N.S., Paris 1942.
- 37) RABI, I. I., Phys. Rev. 51, 652 (1937); MAJORANA, E., Nuovo Cimento 9, 43 (1932); BLOCH, F. et RABI, I. I., Rev. Mod. Phys. 17, 237 (1945).
- 38) BITTER, F. et BROUSSEL, J., M. I. T. Technical Report No 176, 1950.
- 9) GENEUX, E., et WANDERS-VINZENZ, B., Phys. Rev. Letts. 3, 422 (1959).

# Interactions of $K^-$ -Mesons at Rest in Nuclear Emulsions

## V. The Multi-Nucleon Capture Mode

by M. Nikolić\*, Y. Eisenberg\*\*), W. Koch, M. Schneeberger  
and H. Winzeler

Physikalisches Institut der Universität Bern

(19. XI. 1959)

**Abstract.** From a complete study of about 1100  $K^-$ -absorptions at rest in nuclear emulsions, it was determined that the multinucleon capture mode forms  $37\% \pm 5\%$ . The energy spectra of the  $\Sigma$ -hyperons were measured and calculated and a separation between  $\Sigma$ -hyperons resulting from single nucleon and multinucleon  $K^-$ -captures was performed. Some evidence to the fact that multinucleon captures take place mostly in the heavy emulsion nuclei is presented. A method of determining all the multinucleon reaction rates is suggested and applied to our own data. This method makes use of the number and spectra of fast protons emitted from the  $K^-$ -capture stars obtained in the present work. The results are compared with the predictions of a model recently proposed.

### 1. Introduction

In the present work we wish to report about  $K^-$ -captures at rest leading to a multinucleon reaction. The work was based upon a complete study of about 1600  $K^-$ -interactions in nuclear emulsions. We have previously published results about the  $K^-$ -interactions in flight<sup>1)</sup> and a partial analysis of the captures at rest<sup>2)</sup>. In the next work<sup>3)</sup> we shall discuss in detail the single nucleon  $K^-$ -captures at rest and in the present paper we shall concentrate on the multinucleon captures.

A single nucleon  $K^-$ -capture ( $1N$ ) is, by definition, any  $K^-$ -absorption, yielding a  $\pi$ -meson and a hyperon ( $Y$ ) in the final state, namely:

$$K^- + N \rightarrow Y + \pi.$$

A multinucleon (or 2-nucleon,  $2N$ ) capture per definition does not yield a pion in its final state, namely:

$$K^- + 2N \rightarrow Y + N,$$

where  $N$  stands for a nucleon ( $n$  or  $p$ ) and  $Y$  for a  $\Lambda^0$  or any  $\Sigma$ -hyperon. On the basis of the present analysis we shall show that a  $K^-$ -meson is absorbed via the  $2N$ -absorption channel in about 35% of all  $K^-$ -absorp-

\* On leave of absence from the Institute of Nuclear Sciences, Boris Kidrich, Belgrade.

\*\* Also from the Weizmann Institute of Science, Rehovoth.

tions at rest. This number is in good agreement with previously published results by the  $K^-$ -Collaboration<sup>4</sup>), and with the results of IV. However, as we shall see later, the entire analysis of the  $2N$ -reactions depends, to a large extent, upon the number of identified charged  $2N$ - $\Sigma$ -hyperons. In the present work we have analysed about 1100  $K^-$ -captures at rest, and we estimate that about 400 of these were due to  $2N$ -captures. But, as will be shown, the emitted number of charged  $\Sigma$ -hyperons due to multinucleon capture is only 36 and only a small fraction of these were completely identified. Therefore, some of our results should be regarded as qualitative only, and a much better statistics (probably a factor of ten) is necessary before any final quantitative conclusions about the  $2N$ -capture mode could be reached.

From the present data (see VI) we have some evidence that the  $2N$ -capture takes place mostly on the heavy emulsion nuclei. This evidence comes from a study of the electrons associated with certain  $1N$ - and certain  $2N$ - $K^-$ -absorptions. It yields that about 50% of captures in AgBr and 10–25% of absorptions in CNO lead to the  $2N$ -reaction.

The raw observed data are summarized in the next section. For more details concerning the  $\pi$ -data in particular and the  $1N$ -absorptions in general, one should consult VI. In section 3, the  $\Sigma$ -hyperon events are discussed in detail and a separation between  $1N$ - $\Sigma$ -hyperons (that is,  $\Sigma$ -hyperons produced in  $1N$ - $K^-$ -capture) and  $2N$ - $\Sigma$ -hyperons is performed. In section 4, a method of differentiating between the various  $2N$ -reaction rates is described and applied to our own data. This method could, in principle, yield reasonably good results; but, as we stated before, due to the small number of completely identified  $2N$ - $\Sigma$ -hyperons, the final results should be regarded as merely qualitative. We have confidence in the value of the relative yield ( $\sim 35\%$ ) of the  $2N$ -captures, but the  $2N$ -reaction rates given in section 4 should be trust to only within  $\sim 50\%$ , particularly since the  $2N$ - $\Sigma$ -absorption probability (see sec. 4) may depend upon the relative heavy/light  $2N$ -capture yield. Finally, in section 5, a short discussion of the present work is presented.

## 2. Observed values

Our scan method was 'along the track' (see ref. 5 for details concerning exposure, stack and scan method), from a certain pick-up point, about 3.5 cm from the  $K^-$ -entrance edge.

All tracks selected by ionization criteria and leading to  $K_0$  events (namely endings of tracks without visible secondary prongs) were followed back until the point of entrance to the stack. Thus, contamination arising from secondary protons produced in the stack before the pick-up strip and having, by chance, similar direction and ionization as true  $K$ -particles, was eliminated. By studying the range distribution in the

stack of all  $K \rho$  and  $K \sigma$  events (namely, endings producing a visible capture star), protons entering the stack were eliminated.

The raw observed values obtained in the present experiment are summarized in Table 1. (The  $K^-$ -free proton absorptions in the emulsion as well as 10 reemitted  $K^-$ -mesons coming to rest are not included). Of all 1104  $K^-$ -captures the fraction of  $K \rho$ 's is 11.2%. The classification of the events is phenomenological. Thus, a  $(\pi^+, HF)$  type of event, for example, means that from a  $K^-$ -capture star an unidentified  $\pi$ -meson and a hyperfragment were emitted together, generally with other stable charged particles. Under the column "O stable prongs" we have listed the number of  $K^-$ -captures, of each type, giving rise to unstable particles only ("clean events") and the  $K \rho$  events. In general, a prong is a track longer than  $2 \mu$ . In the last 3 columns we give the number of events of each class, associated with the emission of at least one fast proton having a kinetic energy over 20, 30 and 60 MeV, respectively. The numbers in brackets indicate the number of events associated with two fast protons.

By studying the distribution in depth of  $K^-$ -captures producing  $\pi$ -mesons, a small deficiency was found in the top and bottom of the emulsion. The pion loss in the central parts of the emulsions is estimated to be very small. A total number of 37 pions (namely a 10% correction) should be added to the values given in Table 1 in order to account for the observation loss. These 37 events were distributed proportionally among the various classes of pions observed.

Due to the dimensions of the stack, most particles could be followed and identified. 15 secondary baryons escaped from the stack. From their times of flight and the relations between the emitted hyperons and protons from the  $K^-$ -stars, the conclusion can be drawn that probably none of these tracks belonged to a hyperon. All interactions of secondary particles in flight were analyzed in order to identify the possible  $\Sigma^\pm$ -interaction in flight. Two such interactions were found. Since charge exchange scattering of pions and  $\Sigma$ -hyperons produced in  $1N$ -reactions seems to be very small (only one example of an associated  $\pi^-$  and  $\Sigma^-$ -production was found), the charge of the pion (or hyperon) was inferred from the charge of its partner in several associated  $(\pi, \Sigma)$  events. These events were included as completely identified events in Table 1. In all  $(\pi, \Sigma)$  events it was possible to identify at least one of the unstable particles.

In Table 1 only identified  $\Sigma^-$ -mesons are included, i. e.  $\Sigma^-$  one prong absorption stars having a prong length greater than  $200 \mu$  as well as all  $\Sigma^-$  capture stars with two or more prongs.—

The charge division of the  $(\pi^\pm, OY)$  events is discussed in VI, and the division of the  $(O\pi, \Sigma^\pm)$  events in next section of the present work.

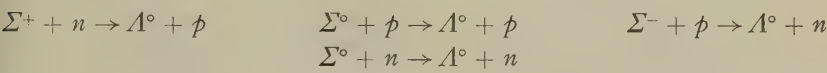
In the present analysis we shall have to use the number of fast protons



Table 1  
Raw Observed Data[illegible]

(> 60 MeV) emitted in  $2N$ -capture processes. Therefore, we wish to estimate how many fast protons produced in  $1N$ -reactions are among the ( $0\pi$ ,  $OY$ ) class of events.

From Table 1 it seems that ( $\pi^-$ ,  $OY$ ) events are accompanied by the emission of fast protons, in contrast to the ( $\pi^+$ ,  $OY$ ) events. The fast protons in ( $\pi^-$ ,  $OY$ ) class may come from  $\Sigma^0$  or  $\Sigma^+$  absorptions, or also from  $\Lambda^0$  absorption (formation of a cryptofragment). The contribution of the latter process to the fast proton (> 60 MeV) yield can be neglected, as can be seen from our data\*). The contribution of  $\pi^-$  inelastic scattering to the number of fast protons in the ( $\pi^-$ ,  $OY$ ) class of events is also small but was taken into account for the ( $\pi^-$ ,  $\Lambda^0$ ) events. (The pions from the ( $\pi$ ,  $\Sigma$ )-reaction have an average energy of 53 MeV, and thus would not give protons over 60 MeV, when inelastically scattered). Also  $\Sigma^-$ -absorption does not give rise to fast protons, since no ( $\pi^+$ ,  $OY$ ) star had an associated fast proton. Thus, most of the fast protons come from  $\Sigma^0$  and  $\Sigma^+$ -absorption. This is clear in view of the different  $\Sigma$ -absorption reactions:



From our  $1N$ -reaction rates and  $\Sigma$ -hyperon absorption probabilities (see VI) we can get the numbers of  $\Sigma^+$  and  $\Sigma^0$ -absorptions associated with  $\pi^-$ -emission. Assuming that the fast (> 60 MeV) proton yield in  $\Sigma^0$ -captures is half of the fast proton yield of  $\Sigma^+$ -absorptions, and using the number of fast protons associated with  $\pi^-$ -emission, we get that the fast (> 60 MeV) proton yield in  $\Sigma^+$ -captures is 17% and in  $\Sigma^0$  capture

Table 2  
Estimate of fast protons (over 60 MeV) in the ( $0\pi$ ,  $OY$ ) type of events  
arising from  $1N$ - $K^-$ -captures

Hyperon and pion absorbed . . . . .	3
Hyperon absorbed, pion escapes:	
(i) $\pi^0$ escapes . . . . .	3
(ii) $\pi^+$ escapes but is not detected (loss correction - 10% of observed fast protons associated with emitted $\pi$ 's . . . . .	2
Pion absorbed, hyperon escapes:	
(i) Neutral hyperon escapes . . . . .	6
(ii) $\Sigma^-$ escapes but is not detected because it produces a zero or a short one prong capture star . . . . .	3
Total number of expected $1N$ fast protons . . . . .	17

8.5%. This yield is about half the corresponding yield in  $\pi$ -absorptions (40% for  $\pi^+$ )<sup>6)7)</sup> as should be expected, since the energy release in  $\Sigma$ -captures is considerably smaller than the energy release in  $\pi$ -captures. Assuming also that the fast (> 60 MeV) proton yield in  $\pi^0$ -captures is

\*) See also VI.

half the yield of  $\pi^+$ 's, we can now estimate the total number of fast protons ( $> 60$  MeV) arising from  $1N$ -reactions in the  $(O\pi, OY)$  type of events. This estimate is summarized in Table 2.

### 3. The $\Sigma$ -hyperon events

The best indication for a substantial multinucleon  $K^-$ -capture at rest comes from the  $\Sigma$ -hyperon energy spectra. Since the  $Q$  value for the single nucleon captures ( $K^- + \text{nucleon} \rightarrow \Sigma + \pi + 100$  MeV) is much smaller than the  $Q$  value for the  $2N$ -captures ( $K^- + 2N \rightarrow \Sigma + N + 240$  MeV) and since in the  $1N$  capture most of the energy is carried away by the light particle ( $\pi$ -meson), it is to be expected that the  $\Sigma$ -energy spectrum should be entirely different in these two cases. In Fig. 1a and 1b we give the energy spectrum of the hyperons from the  $\Sigma - \pi$

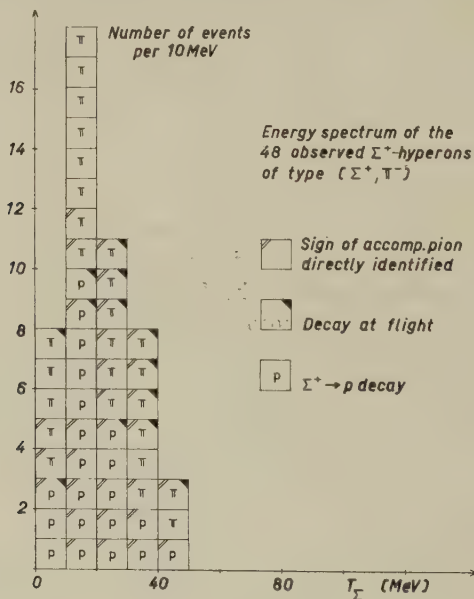


Fig. 1 a

events (that is,  $K^-$ -stars from which both a  $\Sigma$ -hyperon and a  $\pi$ -meson were emitted), being clearly  $1N$ -absorptions, and in Fig. 2 the spectrum of the  $(O\pi, \Sigma)$  events is plotted. The  $(O\pi, \Sigma)$  class of events is composed of  $2N$ - $K^-$ -captures, and of  $1N$ -captures with the subsequent absorption of the pion, or with the emission of a  $\pi^0$ -meson. By inspecting Fig. 2 it becomes clear that the  $(O\pi, \Sigma)$  events could be separated, in a natural way, into two groups: the first group having an energy distribution similar to the  $(\pi, \Sigma)$  events (Fig. 1a and 1b) and which must therefore, be due to  $1N - \Sigma$  production, and a second group, containing  $\Sigma$ 's

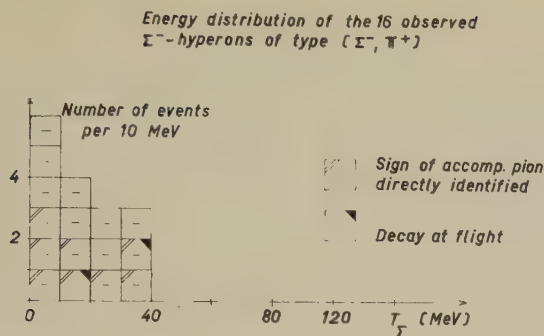


Fig. 1 b

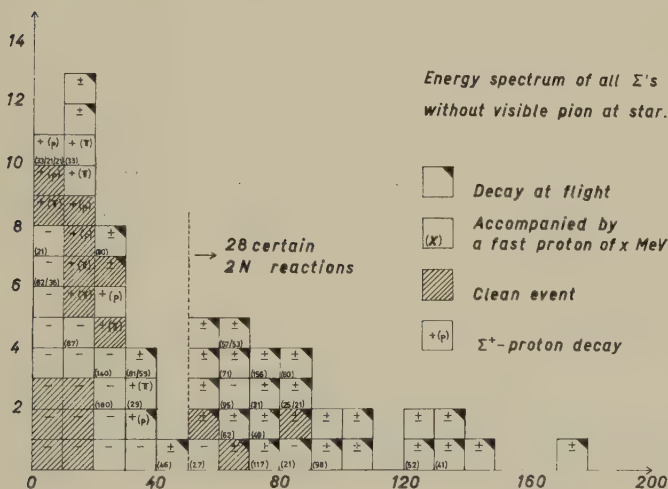


Fig. 2

of much higher energies, which must be due to  $K^-$ -captures on two or more nucleons.

Our  $\Sigma$ -spectra are very similar to that published by the  $K^-$ -Collaboration<sup>4)</sup>, and both indicate that a large proportion of the  $K^-$ -stars are due to  $2N$ -absorptions. However, it is not easy to derive directly the percentage of  $2N$ -captures from the relative numbers of fast  $\Sigma$ -hyperons, since the capture mechanism, the  $\Sigma$ -absorption probability and the ratio of charged to neutral hyperons might be different in  $1N$  and in  $2N$ -captures.

The best estimate of the total number of  $2N$ -absorptions could be derived from a complete analysis of the  $1N$ -events (see VI). From the total numbers of pions observed, the  $\pi$ -absorption probability, and by assuming charge independence, we get that (see VI for details) in  $400 \pm$

50 events, out of a total of 1104 events, the  $K^-$ -particle must have been captured by two or more nucleons.

We wish now to turn to the complete analysis of the  $\Sigma$ -events. The raw observed values are given in Table 3. These numbers have to be corrected for possible pion loss which is rather small (about 10%. See sec. 2 for details), and for unidentified  $\Sigma^-$ -hyperons. The second correction is the most serious one and we wish to discuss it in more detail. Since  $\Sigma^-$ -hyperons when coming to rest are captured by nuclei, they can be identified only if they make a 2 or more prongs capture star, or a one prong star, provided this prong is longer than  $200\mu$ .  $\Sigma^-$ -capture stars with zero prongs and short single prongs would easily be confused with proton endings in the emulsion. The best way of estimating the  $\Sigma^-$ -correction factor is by studying the ends of  $\Sigma^-$ 's resulting from  $K^-$  free proton absorption:  $K^- + p \rightarrow \pi^+ + \Sigma^-$ . The world collection, based upon 107 events (63 collected by the  $K^-$ -Collaboration<sup>8</sup>) and 44 communicated privately to us by kindness of Dr. Ceccarelli, yields the following correction factor: (all  $\Sigma^-$ -captures)/( $\Sigma^-$ -yielding one prong  $\leq 200\mu$ , or 2 and more prongs) = 2,6 so that each observed  $\Sigma^-$ -capture star having 2 or more prongs, or at least 1 prong longer than  $200\mu$ , is equivalent to 2,6  $\Sigma^-$ -hyperons emitted. This factor will be exclusively used in the present work.

We wish now to remark about the  $+/-$  division of the slow  $\Sigma^\pm \rightarrow \pi^\pm$ -decays at flight. In our 50 examples of observed ( $\pi$ ,  $\Sigma$ ) production, there is only one event of probable charge exchange, namely an associated ( $\pi^-$ ,  $\Sigma^-$ )-emission. Therefore we may safely deduce the charge of an unidentified particle, if the charge of its partner was identified. In the ( $\pi^\pm$ ,  $\Sigma^\pm$ ) class of events we were always able to identify at least one particle. Thus, in all cases of this type the charge of the pion and the  $\Sigma$ -hyperon was known. The 6 slow ( $T_\Sigma \leq 50$  MeV) unidentified  $\Sigma$ 's from ( $0\pi$ ,  $\Sigma^\pm$ ) events were divided according to the  $\Sigma$ -life time expected values, since every  $\Sigma$  coming to rest after a time of flight  $t_i$  should correspond to a total number of  $\exp(t_i/\tau_\Sigma)$   $\Sigma$ 's decaying in flight and coming to rest.

Finally we had to estimate the number of slow (below 50 MeV)  $\Sigma$ -hyperons produced by the  $2N$ -capture mechanism. By comparing our calculated  $2N$ -hyperon spectrum (obtained from Capps<sup>9</sup>) model and the nucleon momenta distributions with a peak at 170 MeV/c; see Fig. 3), with the experimental spectrum we estimate that about 5  $2N$ -hyperons could be among the slow ( $0\pi$ ,  $\Sigma$ ) events. This number is also compatible with the estimate obtained by using the mean  $2N$   $\Sigma$ -energy and arguments concerning the  $\Sigma$  life time.

The best estimates of the  $\Sigma$ -hyperon emission values are given in the following Table 4. The numbers in Table 4 were obtained by using the



Table 3  
 $\Sigma$ -Hyperon Observed Values

Type of event	Total number		'clean' events	Stars emitting fast protons $Tp \geq$		
	$T_2 < 50$	$T_3 > 50$		20MeV	30MeV	60MeV
$(\pi^-, \Sigma^+)$						
$\Sigma^+ \rightarrow p$ decay at rest .	17	0	12	0	0	0
$\Sigma^+ \rightarrow \pi$ decay at rest .	18	0	13	0	0	0
$\Sigma^+ \rightarrow p$ decay in flight .	4	0	4	0	0	0
$\Sigma^+ \rightarrow \pi$ decay in flight .	9	0	5	0	0	0
$(0 \pi, \Sigma^+)$						
$\Sigma^+ \rightarrow p$ decay at rest .	3	0	2	0	0	0
$\Sigma^+ \rightarrow \pi$ decay at rest .	7	0	4	2	1	0
$\Sigma^+ \rightarrow p$ decay in flight .	3	0	1	1 (1)	1	0
$(\pi^+, \Sigma^-)$						
$\Sigma^- \rightarrow \pi^-$ decay in flight.	2	0	2	0	0	0
$\Sigma^-$ -capture stars . . . .	14 (*)	0	8	1	0	0
$(0 \pi, \Sigma^-)$						
$\Sigma^- \rightarrow \pi^-$ decay in flight.	0	1	0	1	0	0
$\Sigma^-$ -capture stars . . . .	18	2	6	7 (1)	5	4
$(0 \pi, \Sigma^\pm)$						
$\Sigma^\pm \rightarrow \pm \pi$ decay in flight	6	23	4	15 (3)	14 (2)	8
$(\pi^-, \Sigma^-)$						
$\Sigma^-$ -capture stars . . . .	1	0	0	0	0	0
$(0 \pi, \Sigma^\pm)$						
$\Sigma^\pm$ interactions in flight	0	2	0	0	0	0

\*) One of these events, though a certain  $\Sigma^-$ , was not included in final analysis, since it did not satisfy exactly our definition of an observed  $\Sigma^-$ -hyperon.

$\Sigma^-$  prong correction factor mentioned above, by  $\Sigma$  life time consideration and by extrapolating the fast  $\Sigma$  energy spectrum to lower energies. The single nucleon emission values will be used in VI, and the  $2N$ -values in the next section of the present work.

Details of the derivation of the final  $1N$ -emission values.

$(\Sigma^-, \pi^+)$  39 events:  $13 \times 2.6 = 34$   $\Sigma^-$ 's coming to rest, 2  $\Sigma^- \rightarrow \pi^-$  decays at flight and 3 taken from the  $(\Sigma^-, 0 \pi)$  class to account for the  $\pi$  loss correction (sec. 2).

$(\Sigma^+, \pi^-)$  54 events: 48 directly observed, 3 taken from the  $(\Sigma^+, 0 \pi)$  events because of the  $\pi$ -dip correction (sec. 2) and 3 more from the  $(0 \Sigma, \pi^-)$  events to account for the  $\pi$  loss correction in  $\Sigma \rightarrow \pi$  decay.

$(\Sigma^-, 0 \pi)$  46 events:  $18 \times 2.6 = 47$  slow  $\Sigma^-$ 's coming to rest. To these we added 5 from slow  $(\Sigma^\pm, 0 \pi)$  decay in flight. From the total number, 3 should be subtracted as slow  $2N$ -contribution, and other 3 removed to the  $(\Sigma^-, \pi^+)$  class of events because of the  $\pi$ -loss correction (sec. 2).

Table 4  
Corrected  $\Sigma$ -hyperon emission values

Type of event	Numbers emitted	
1N- $K^-$ -captures:		
$(\Sigma^-, \pi^+)$ . . . . .	39	85
$(\Sigma^-, 0\pi)$ . . . . .	46	
All $\Sigma^-$ . . . . .		
$(\Sigma^+, \pi^-)$ . . . . .	54	
$(\Sigma^+, 0\pi)$ . . . . .	10	
All $\Sigma^+$ . . . . .		64
All 1N $\Sigma$ -hyperons . .		149
2N- $K^-$ -captures:		
$\Sigma^+$ . . . . .	2	
$\Sigma^-$ . . . . .	9	
$\Sigma^0$ . . . . .	25	
All 2N $\Sigma$ -hyperons . .		36
Total number of emitted $\Sigma$ -hyperons . . . . .		185

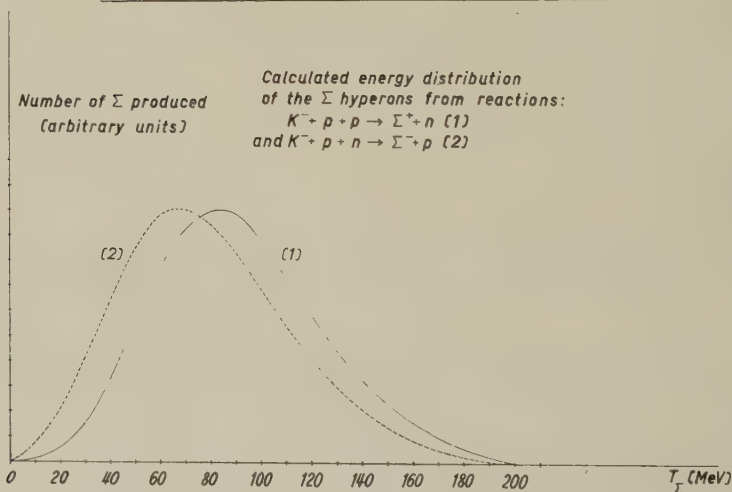


Fig. 3

$(\Sigma^-, 0\pi)$  10 events: 13 slow  $\Sigma^+$ 's directly observed. One out of the 6 slow  $(\Sigma^\pm, 0\pi)$  was assumed positive and one more was added because of the  $\Sigma \rightarrow \pi$  loss correction. From these we subtract 2 for the slow 2N-contribution, and other 3 to account for the  $\pi^-$  loss correction (removed to the  $\Sigma^+-\pi^-$ -class).

#### 4. The 2N-reaction Rates

In the present section we would like to estimate the reaction rates of the  $K^-$ -2N-capture mode, using the data obtained in the present experi-

ment, as well as other published data. The seven possible  $2N$ -reactions are listed in Table 5, together with the calculated reaction rates, for a self conjugate nucleus assuming charge independence (IV).

Table 5		
(1)	$K^- + n + n \rightarrow \Sigma^- + n$	$p^2$
(2)	$K^- + n + p \rightarrow \Sigma^- + p$	$2/9 p^2 + 2/9 q^2 + 2/3 s^2 - 4/9 pq \cos \delta$
(3)	$\rightarrow \Sigma^0 + n$	$4/9 p^2 + 1/9 q^2 + 1/3 s^2 + 4/9 pq \cos \delta$
(4)	$\rightarrow \Lambda^0 + n$	$1/3 q_A^2 + s_A^2$
(5)	$K^- + p + p \rightarrow \Sigma^+ + n$	$1/9 p^2 + 4/9 q^2 + 4/9 pq \cos \delta$
(6)	$\rightarrow \Sigma^0 + p$	$2/9 p^2 + 2/9 q^2 - 4/9 pq \cos \delta$
(7)	$\rightarrow \Lambda^0 + p$	$2/3 q_A^2$

For comparison with actual emulsion experiments ( $n/p$  ratio  $\sim 1.3$ ), the first reaction should be multiplied by  $(1.3)^2 = 1.69$ , and reactions (2), (3) and (4) by 1.3. All notations are the same as in IV. We shall summarize then briefly here:

$$\begin{aligned} \left\langle T = \frac{3}{2} \left| H^{2N} \right| T = \frac{3}{2} \right\rangle &= p e^{i\alpha} \\ \left\langle T = \frac{1}{2} \left| H^{2N} \right| T = \frac{1}{2} \right\rangle_s &= q e^{i\beta} \\ \left\langle T = \frac{1}{2} \left| H^{2N} \right| T = \frac{1}{2} \right\rangle_a &= s e^i \end{aligned}$$

and  $\delta = \alpha - \beta$ . The definition of  $q_A$  and  $s_A$  is similar to that of  $q$  and  $s$ , only  $H_A^{2N}$  should be substituted for  $H_F^{2N}$ .

By inspecting Table 5 it becomes clear that charged hyperons could be produced only in reaction (1), (2) and (5); namely  $(\Sigma^-, n)$ ,  $(\Sigma^-, p)$  and  $(\Sigma^+, n)$  pairs. In the primary process, the hyperons from the  $(\Sigma^-, n)$  and  $(\Sigma^+, n)$ -reactions are produced without charged partners, whereas hyperons from the reaction  $(\Sigma^-, p)$  are produced with a charged particle. Now subsequent interactions of the hyperon and the nucleon will distort the production picture to a large extent, but nevertheless one can hope to identify the above reactions, when direct identification of the hyperon is not possible, by a study of the accompanying stable prongs. In particular  $(\Sigma^+, n)$  and  $(\Sigma^-, n)$  production processes should be expected to appear, to some extent, as  $\Sigma^\pm$  clean events, and  $(\Sigma^-, p)$  production should seldom appear as  $\Sigma^-$  clean events, and quite often appear as a  $\Sigma^-$ -hyperon accompanied by a fast proton. Indeed, from systematic studies of proton and neutron initiated stars<sup>10) 11)</sup>, one can estimate that about 25% of the neutron interactions (in our energy range) produce zero prong stars and that only 3% of the proton interactions yield zero prong stars. Thus, one expects that about 25% of the  $(\Sigma^+, n)$  and  $(\Sigma^-, n)$  productions would appear as  $\Sigma^\pm$  clean events, and that practically none of the  $(\Sigma^-, p)$  productions appears as a " $\Sigma^-$  clean event".

If we turn now to the world collection of identified fast hyperons ( $T_{\Sigma} \geq 50$  MeV) produced by  $K^-$ -captures at rest in nuclear emulsions<sup>4)</sup>, <sup>8)</sup>, <sup>12)</sup>, which represents certain examples of  $2N$ - $K^-$ -captures, we find the following very interesting results:

(i) Out of 13 identified  $\Sigma^+$ -hyperons, 5 were "clean events" (4 were accompanied by a proton with kinetic energy over 30 MeV).

(ii) Out of 15 identified  $\Sigma^-$ -hyperons not a single one was a "clean event" (6 of 11 of these were accompanied by a proton with kinetic energy over 30 MeV).

The only reasonable interpretation of the above phenomena, as was pointed out already by the  $K^-$ -Collaboration<sup>8)</sup>, is that the production rate of the  $(\Sigma^-, n)$ -reaction is very small. In analogy with the  $(\Sigma^+, n)$  events, a production of merely 3  $(\Sigma^-, n)$  events should have manifested itself by giving rise to a single "clean event". No such event was observed, therefore we may conclude that the  $(\Sigma^-, n)$  to  $(\Sigma^-, p)$  production ratio is probably smaller than 3/13. In the following analysis we shall assume that the production rate of the  $(\Sigma^-, n)$ -reaction is zero. This point will be eventually checked by identifying more fast  $\Sigma^-$ -hyperons, but probably we could not be very wrong by assuming that the  $(\Sigma^-, n)$ -production rate is zero – namely that the  $T = 3/2$   $2N$ -matrix element ( $p$ ) is zero.

We wish to comment about the multinucleon hyperon absorption probability. Since the energy of  $2N$ -hyperons is quite large, the transmission probability and therefore also the absorption probability  $A_{\Sigma}^{2N}$  of positive and negative  $2N$ -hyperons is assumed to be equal. One cannot use here the  $1N$   $A_{\Sigma}$ 's obtained in VI, because the  $2N$ -reaction is expected to take place in a region of high nuclear density and also we have some evidence that the  $2N$ -captures take place mostly in the heavy emulsion nuclei (see VI). In the analysis of our stars in flight (III) we have obtained  $A_{\Sigma} = 0.77 \pm 0.14$ . A recent analysis of interactions of fast  $K^-$ -mesons in flight, performed by the Livermore<sup>13)</sup> group, yielded similar results. Since it is reasonable to assume that the fast  $K^-$ -mesons are absorbed uniformly throughout the nucleus, one may use the  $\Sigma$  mean free path in nuclear matter given by the Livermore group for calculating  $A_{\Sigma}^{2N}$  (see Fig. 2), we shall use here this value. It should be pointed out that, unfortunately, the  $2N$ -reaction rates are rather sensitive to the value of  $A_{\Sigma}^{2N}$ . A change of  $A_{\Sigma}^{2N}$  from 0.7 to 0.8 would increase the estimated number of produced  $2N$ - $\Sigma$ -hyperons by about 50%. Thus, a better estimate of the  $2N$ -reaction rates would require more exact knowledge of the fast  $\Sigma$ -hyperon absorption probability.

The  $2N$ - $\Sigma$ -absorption probability used in the present analysis is 0.7. We estimate that it could be between 0.6 and 0.8 and thus the total number of  $2N$ - $\Sigma$ -hyperons produced turns out to be  $180^{+90}_{-45}$ . Our best estimate of the total number of  $2N$ - $K^-$ -absorptions in our experiment (derived from the analysis of the  $1N$  events; see VI) is  $400 \pm 50$ . Thus:

$$N \{ (\Sigma^0, n) + (\Sigma^0, p) \} = 220 \pm {}^{+70}_{-100}.$$

We wish now to estimate the individual  $2N$ -reactions. Since  $(\Sigma^-, n) \approx 0$ , the  $T = 3/2$  matrix element  $(p)$  is assumed to be  $\approx$  zero, and the reaction rates take a much simpler form – in particular we get that:  $(\Sigma^0, n) = 1/2(\Sigma^-, p)$  and  $(\Sigma^0, p) = 1/2(\Sigma^+, n)$ . By using these simplified relations one can calculate the individual production rates of all the  $2N$ - $\Sigma$ -reactions.

The analysis of our own data will be presented now. The details of the 25 unidentified fast  $\Sigma^\pm$ -hyperons (see Table 4) events are summarized below:

$\Sigma^\pm$ , total	Number of stable prongs					
	0	1	2	3	4	5
25	3(0)	5(6)	3(2)	4(2)	3(2)	1(0)

The number of protons over 30 MeV is given in brackets.

By the arguments presented earlier in this section, we may assume that  $(\Sigma^-, n) \approx 0$ , and that the number of the “clean” events represent about 5/13 of all  $(\Sigma^+, n)$  productions. Also, in the world collection of identified  $2N$ - $\Sigma$ -hyperons, 6 out of 11  $\Sigma^-$ ’s and 4 out of 13  $\Sigma^+$ ’s had an associated fast ( $> 30$  MeV) proton. Therefore, the best division of the 25 observed  $\Sigma^\pm$ -hyperons would be 11  $\Sigma^+$  and 14  $\Sigma^-$ , and thus, our estimate of the  $2N$ -charged hyperon emission value becomes:

Reaction	Numbers emitted	Clean events		With fast protons ( $> 30$ MeV)	
		observed	expected*	observed	expected*
$(\Sigma^+, n)$	13	4	5	17 (all together)	4
$(\Sigma^-, p)$	23	0	0		13
*) The expected number of “clean events” is 5/13 of the $(\Sigma^+, n)$ emission value, and that of fast protons is 6/11 and 4/13 of the $(\Sigma^-, p)$ and $(\Sigma^+, n)$ emission values respectively.					

Comparing these emission values with Table 4, we get that 17% of all  $\Sigma^+$ -hyperons and 21% of all  $\Sigma^-$ -hyperons are produced in  $K^-$ -multi-nucleon captures. This agrees with the recent number published by the  $K^-$ -Collaboration<sup>8)</sup> (15%  $\Sigma^+$  and 25%  $\Sigma^-$ ). Using the  $\Sigma$ -emission values, the  $2N$ -absorption probability, and the above simplified relations among



Table 6

Reaction	(1) $\Sigma^- n$	(2) $\Sigma^- p$	(3) $\Sigma^0 n$	(4) $\Lambda^0 n$	(5) $\Sigma^+ n$	(6) $\Sigma^0 p$	(7) $\Lambda^0 p$
numbers of events (all 400)	$\sim 0$	77	38	140	43	22	80
Rates in %	$\sim 0\%$	19%	9.5%	35%	11%	5.5%	20%

the  $\Sigma$ -reaction rates, we obtain the  $2N$ - $\Sigma$ -production values. They are summarized in Table 6.

As we stated before, the estimate of the total  $2N$ - $\Lambda$ -production was  $220^{+70}_{-100}$ . The separation between the  $(\Lambda^0, n)$  and  $(\Lambda^0, p)$  reactions will be done by using the fast ( $> 60$  MeV) proton data. We have observed 137 fast protons emitted from the  $(0\pi, 0\Sigma)$  and  $(0\pi, \text{HF})$  stars (see Table 1) and estimate that  $\sim 17$  of these must be due to subsequent interactions of particles ( $\pi$ 's and  $\Sigma$ 's) produced by  $1N$ - $K^-$ -absorptions (see Table 2). One additional fast proton was subtracted to account for unidentified fast  $\Sigma^-$ -coming to rest. The remaining 119 fast protons are, therefore, very probably emitted directly in one of the  $2N$ -reactions. The energy spectrum of the fast protons is plotted in Figure 4. An estimate of the total number of protons produced in the  $2N$ -reactions may be obtained

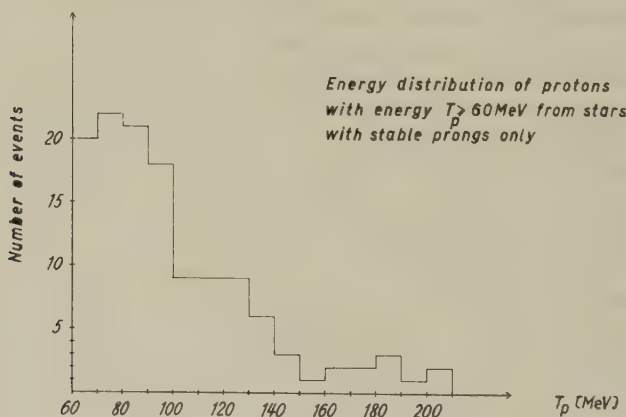


Fig. 4

by extrapolating the observed spectrum to zero energy (linearly). We thus get about 50 additional events. This means that the protons over 60 MeV represent about 70% of all protons directly emitted in a  $2N$ -reaction. Now the number of protons not associated with a  $\Sigma^-$ -hyperon from reaction (2) ( $\Sigma^-, p$ ) is  $77 - 23 = 54$ , and similarly from reaction (6) we expect 22 protons, all together 76 events. About 70% of these should have kinetic energies above 60 MeV, namely 53 events. To these numbers

we must add the expected number of fast protons from  $\Sigma^+$  and  $\Sigma^-$ -absorptions. The fast proton yield in  $1N$ - $\Sigma^+$ -absorption (mean energy release  $\sim 110$  MeV) is about 17%, as was shown in section 2. On the other hand, the fast proton yield in high energy  $\pi^+$ -stars (energy release of  $\sim 230$  MeV) is about 40%<sup>6)7)</sup>. Since the  $2N$ - $\Sigma^+$ -hyperon absorption is associated with an energy release of  $\sim 180$  MeV ( $M_\Sigma - M_A \approx 80$  MeV, and in addition to that about 100 MeV  $\Sigma$ -kinetic energy), we have estimated the fast proton ( $> 60$  MeV) yield in  $2N$ - $\Sigma^+$  and  $\Sigma^-$ -absorptions to be 30% and 15% respectively. A  $\Sigma^-$ -absorption, similar to  $\pi^-$ -absorption, would very rarely yield an emission of a fast proton. Thus, the 31  $\Sigma^+$ -absorbed would give us 9 fast protons, and the 27 (since  $(\Sigma^0, n) = 38$  and  $A_\Sigma^{2N} = 0.7$ )  $\Sigma^-$ -absorbed would yield 4 fast protons. The total number of fast protons produced directly and indirectly becomes now 66, and  $122 - 66 = 56$  fast protons must be due to the  $(\Lambda^0, p)$ -reaction. The production value of this reaction should be about  $56/0.7 \approx 80$ , and therefore, that of the  $(\Lambda^0, n)$  reaction  $220 - 80 = 140$ .

Our best estimate of all the  $2N$ -reaction rates are summarized below. The errors are about 50%.

### 5. Discussion

In the present experiment we have analysed about 1100  $K^-$ -captures at rest on complex nuclei, and we estimate that about 400 out of the 1100 – namely about 35% – were multinucleon captures. Our best estimate of the frequencies of the various  $2N$ -capture modes is given in Table 6 above. However, we wish to emphasize that only the total number of multinucleon captures should be considered reliable, and that the individual reaction rates are known to an accuracy of 50% only. Apparently improved statistics and a better estimate of  $A_\Sigma^{2N}$  are required for a more exact determination of the various  $2N$ -reactions rates. Considering the world statistics, we may make more definitive statements about the  $2N$ -reaction rates of charged hyperons: the frequency of the  $(\Sigma^+, n)$ -reaction is quite small – its upper limit being about 30% of the  $(\Sigma^-, p)$ -reaction. Also the ratio of the reactions  $(\Sigma^-, p)/(\Sigma^+, n)$  may be regarded as being  $\approx 1.5$ . A less reliable statement could be made about the  $2N$ - $\Lambda$ -production: if  $A_\Sigma^{2N}$  is indeed  $\approx 0.7$ , then about 50% ( $\pm 20\%$ ) of all  $2N$ - $K^-$ -absorptions give rise to a  $\Lambda^0$ -hyperon (close to the yield from the  $1N$ - $K^-$ -absorptions; see VI) and the ratio of  $(\Lambda^0, n)/(\Lambda^0, p)$  production is about  $2 \pm 1$ .

We wish to state that we have an indication (see VI for details) that the  $2N$ -absorptions take place more on the heavier emulsion nuclei (AgBr), since the percentage of electrons associated with certain  $2N$ -stars was  $28.7 \pm 4.4\%$ , whereas the corresponding frequency in certain  $1N$ -captures was  $18.2 \pm 2.1\%$ . It should be noted also that the  $2N$ -yield

in  $K^-$ -captures in deuterium is very small<sup>14</sup>). This is expected in the  $\Sigma^*$ -model (see below) but perhaps also from general considerations of the correlation among nucleons.

Now, we wish to comment about a recently proposed model<sup>15</sup>) (the " $\Sigma^*$ -model") accounting for the source of  $2N$ - $K^-$ -absorptions. According to this model, the fundamental  $K^-$ -absorption occurs at the periphery of the nucleus; but this absorption may sometimes produce a relatively long lived  $K^-$ -proton  $T = O$  resonant state (the  $\Sigma^*$ -state) which may penetrate the nucleus, collide with other nucleons and give rise to the reaction:  $\Sigma^* + N \rightarrow Y + N$ , namely a  $2N$ -reaction. In this model, the  $2N$ -reaction rates have a very simple form:  $(\Sigma^-, n) = 0$ ,  $(\Sigma^0, n) = (\Sigma^0, p) = 1/2 (\Sigma^-, p) = 1/2 (\Sigma^+, n)$  and  $(\Lambda^0, n) = (\Lambda^0, p)$ . In complex nuclei, having  $n/p$  ratio of  $\approx 1.3$ , one should expect, according to the  $\Sigma^*$ -model, that  $(\Sigma^-, p)/(\Sigma^+, n) \approx 1.3$  and also that  $(\Lambda^0, n)/(\Lambda^0, p) \approx 1.3$ . Our reaction rates (Table 6) do not contradict the predictions of the  $\Sigma^*$ -model, but this should not yet be taken seriously, because, as we mentioned before, the frequencies given in table 6 are uncertain to within  $\sim 50\%$ . We wish only to remark that the  $(\Lambda^0, n)/(\Lambda^0, p)$  ratio could also serve as an independent check for the model, in addition to the  $(\Sigma^-, p)/(\Sigma^+, n)$  ratio and the determination of the absolute yield of the  $(\Sigma^-, n)$ -reaction.

### References

- 1) Y. EISENBERG, W. KOCH, E. LOHRMANN, M. NIKOLIĆ, M. SCHNEEBERGER, and H. WINZELER, *Nuovo Cim.* 9, 745 (1958). Here referred to as III.
- 2) Y. EISENBERG, W. KOCH, M. NIKOLIĆ, M. SCHNEEBERGER, and H. WINZELER, *Nuovo Cim.* 17, 351 (1959). Here referred to as IV.
- 3) W. KOCH, Y. EISENBERG, M. NIKOLIĆ, M. SCHNEEBERGER, and H. WINZELER, *Helv. Phys. Acta* 3, 237 (1960). Here referred to as VI.
- 4)  $K^-$ -collaboration, Kaplon's report, High Energy Physics Conference, Geneva 1958 and also Burhop's report, Kiev Conference, 1959.
- 5) E. LOHRMANN, M. NIKOLIĆ, M. SCHNEEBERGER, P. WALOSCHEK, and H. WINZELER, *Nuovo Cim.* 7, 163 (1958).
- 6) G. BERNARDINI and F. LEVY, *Phys. Rev.* 84, 610 (1951).
- 7) M. SHAFI and D. J. PROWSE, *Proc. of the Padua - Venice Conference*, 1957, P. X. - 2.
- 8)  $K^-$ -collaboration, Part 11, preprint 1959.
- 9) R. H. CAPPS, *Phys. Rev.* 107, 239 (1957).
- 10) C. F. LESS, G. C. MORRISON, H. MUIRHEAD, and W. G. V. ROSSER, *Phil. Mag.* 44, 304 (1953).
- 11) H. FISHMAN and A. M. PERRY, JR., *Phys. Rev.* 86, 167 (1952).
- 12) G. L. BACCHELLA, A. BERTHELOT, A. BONETTI, O. GOUSSU, F. LEVY, M. RENÉ, D. REVEL, J. SACTON, L. SCARSI, G. TAGLIAFERRI, and G. VANDERHAEGHE, *Nuovo Cim.* 8, 215 (1958).
- 13) S. C. FREDEN, F. C. GILBERT, and R. S. WHITE, UCRL 5629 - t. (1959).
- 14) Deuterium bubble chamber results, Alvarez report, Kiev Conference, 1959.
- 15) G. ALEXANDER, Y. EISENBERG, and D. KESSLER, *Nuovo Cim.* 15, 484 (1960).

# Interactions of $K^-$ -Mesons at Rest in Nuclear Emulsions

## VI. The Single Nucleon Capture Mode

by **W. Koch, Y. Eisenberg\***, **M. Nikolić\*\***, **M. Schneeberger**  
and **H. Winzeler**

Physikalisches Institut der Universität Bern

(19. XI. 1959)

*Abstract.* From an analysis of the pion producing events in  $K^-$ -captures at rest in nuclear emulsion, the features of the single nucleon  $K^-$ -capture mode were studied. Using the pion and  $\Sigma$ -hyperon emission probabilities obtained in the present experiment, and assuming charge independence, all the single nucleon ( $1N$ ) reaction rates could be determined. Comparing our data to other  $K^-$ -absorption experiments, the energy dependence of the  $1N$  matrix elements becomes evident. It is estimated that  $63\% \pm 5\%$  of  $K^-$ -captures lead to a  $1N$  reaction and the rest give rise to multi-nucleon reactions. A study of electrons associated with the  $K^-$ -capture stars indicates that a large fraction of the  $1N$  captures take place in the light emulsion nuclei and that most of the multi-nucleon captures take place in the heavy nuclei. It is also shown that the  $\Sigma$  (or  $\pi$ ) charge exchange scattering is small, in contrast to a large  $\Sigma$ -interaction ( $\Sigma \rightarrow \Lambda$ ) cross section.

### 1. Introduction

In a previous paper (V) the results concerning the multinucleon (also  $2N$ ) capture mode of  $K^-$ -mesons at rest in nuclear emulsions were presented. In the present work we shall discuss the single nucleon ( $= 1N$ )-capture mode, obtained from a complete analysis of about 1100  $K^-$ -absorptions at rest in emulsions.

From the detailed analysis of all events observed it will be shown that  $63\% \pm 5\%$  of all  $K^-$ -absorptions lead to a  $1N$ -capture. This number does not depend, however, on the complete analysis, and could be obtained (assuming charge independence) from the total number of directly observed pions and from the pion absorption probability, since a  $1N$ -absorption – by definition – has a pion in its final state:  $K^- + N \rightarrow Y + \pi$ . Thus the results given in the present paper will be based upon the study of about 700  $1N$ - $K^-$ -captures.

\*) Also from the Weizmann Institute of Science, Rehovoth.

\*\*) On leave of absence from the Institute of Nuclear Sciences, Boris Kidrich, Belgrade.

A detailed and complete discussion of the raw observed values of all 1100 stars is given in V.

The pion events,  $\pi$ -energy spectra, and the  $\pi^+/\pi^-$  ratio are discussed in section 2 of the present work. In section 3 the emission values of the  $1N$ - $\Sigma$ -hyperon events (namely,  $\Sigma$ -hyperons arising from a  $1N$ - $K^-$ -capture) are briefly summarized. The detailed derivation of the  $\Sigma$ -emission values from the raw observed values, and the separation into  $1N$ - and  $2N$ - $\Sigma$ -events is given in V.

In section 4 the pion and  $\Sigma$ -hyperon absorption probabilities are discussed, and in section 5 the single nucleon reaction rates are presented and compared with the reaction rates obtained in other experiments.

The results of a search for electrons associated with  $1N$ - and  $2N$ - $K^-$ -absorptions are given in section 6, and in section 7 the final conclusions of the present work are summarized.

## 2. The $\pi$ -Events

We have actually observed 373  $\pi$ -mesons and estimated that about 37 pions were lost in the extreme 10% of the emulsions (see V). Thus, the total number of charged pions emitted in all  $K^-$ -captures in the present experiment becomes 410, and the ratio: (charged  $\pi$ 's emitted)/(all  $K^-$ -stars) is  $37.2\% \pm 1.9\%$ , in good agreement with the corresponding value recently published by the  $K^-$ -Collaboration<sup>1)</sup>.

The energy spectrum of all the pions observed is given in Figure 1, and that of the positive and negative pions in Figures 2 and 3, respectively. The dimensions of our stack were such that pions above 100 MeV could seldom be stopped and identified. It should not be expected to find positive pions above 95 MeV, since the only production mechanism for  $\pi^+$  is the  $(\pi^+ \Sigma^-)$ -reaction the  $Q$  value of which is 95 MeV. One may expect, however, negative pions above 95 MeV, from the  $(\pi^- \Lambda^0)$ -reaction ( $Q$  value of  $\approx 170$  MeV). The few pions with energies  $> 90$  MeV which we were able to identify (3 events) were negative. No positive pion having an energy above 90 MeV was identified. The corrected number of pions with energies exceeding 95 MeV is 41. 9 of these had kinetic energy certainly (outside one standard deviation) above 120 MeV. This seems to indicate that the  $\Sigma^-$ -capture in negative energy states<sup>2)</sup> and a simultaneous emission of fast  $\pi^+$  ( $> 95$  MeV) from the  $(\pi^+ \Sigma^-)$ -reaction does not play an important role in the  $K^-$ -absorptions at rest in nuclear emulsions, and that most of the fast pions are due to the  $(\pi^- \Lambda^0)$ -reaction.

The total  $(\pi^- \Lambda^0)$ -production rate, however, is expected to exceed the number of 41 events considerably because of the large inelastic scattering cross section of pions in the corresponding energy interval<sup>3)</sup> and also



because  $\approx 1/3$  of the pions from this reaction are produced with energies  $< 95$  MeV.

The unidentified pions (156 of 410) were divided, at each energy interval, according to the proportions of identified pions in the same energy

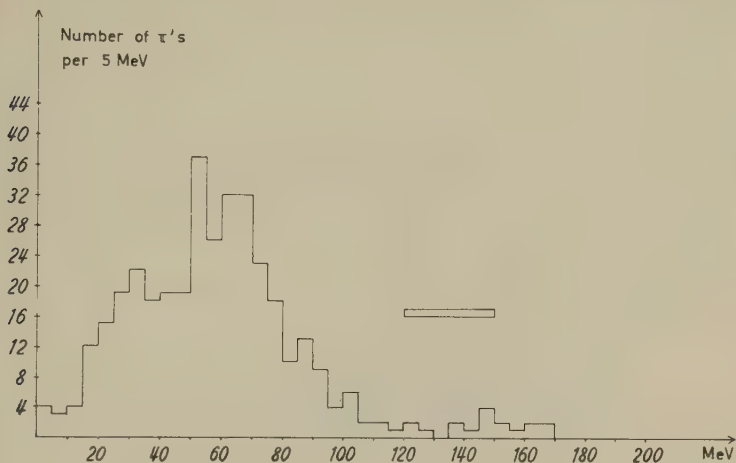


Fig. 1  
Energy spectrum of the 373 observed pions

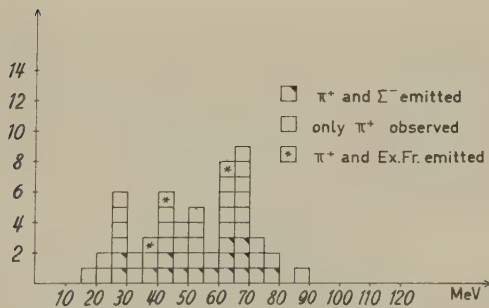


Fig. 2  
Energy spectrum of the 54 identified  $\pi^+$  mesons

interval. Pions having kinetic energy above 95 MeV, were assumed to be all negative and originate from the  $(\pi^- A^0)$ -reaction.

The final pion emission values which we have obtained are:

positive pions: 80  
negative pions: 330  
 $\pi^+/\pi^-$  ratio =  $0.24 \pm 0.03$

These numbers will be used in section 6, in the derivation of the single nucleon reaction rates. The  $\pi^+/\pi^-$  ratio obtained in this experiment does not agree with the bubble chambers results<sup>4)</sup> extrapolated for  $K^-$ -absorptions at rest in nuclear emulsions (using an  $n/p$  ratio of 1.27). The reason

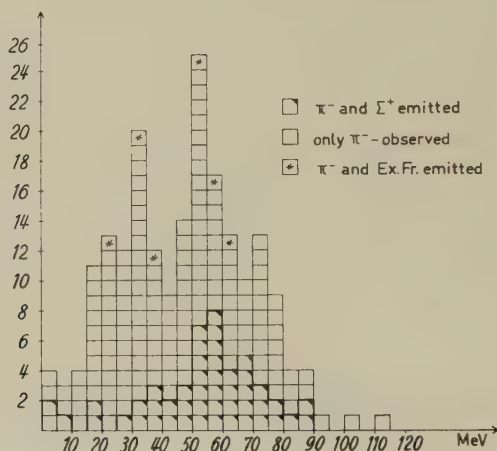


Fig. 3  
Energy spectrum of the 200 identified  $\pi^-$  mesons

for this discrepancy, as was stated before (see III), is the  $K^-$ -nucleon relative momentum dependence of the  $1N$ -matrix elements (due to the nucleon momentum spread in complex nuclei). The  $\pi^+/\pi^-$ -ratio observed in bubble chambers<sup>4)</sup> and emulsions is summarized in Table 1 below. (All numbers extrapolated to emulsions using  $n/p$  ratio of 1.27). The energy dependence of this ratio is quite clear.

Table 1  
 $\pi^+/\pi^-$  ratio in  $K^-$ -absorptions

Experiment	Relative $K^-$ -Nucleon momentum, MeV/c	$\pi^+/\pi^-$ ratio
<i>H</i> -bubble chamber $K^-$ at rest . . . . .	0	0.83
<i>D</i> -bubble chamber (a) $K^-$ at rest . . . .	70	0.41
Present experiment $K^-$ at rest, emulsions	120	$0.24 \pm 0.03$
<i>H</i> -bubble chamber, $K^-$ at flight . . . . .	420	0.23
Emulsions (b) $K^-$ at flight . . . . .	380	$0.10 \pm 0.04$

(a) The derived proton and neutron absorption rates were used. See section 5.

(b) Based upon the combined results of III and ref. 5.

3. The  $\Sigma$ -Hyperon Events

The observed values as well as the derivation of the emission values and the separation into  $1N$  and  $2N$ -events were already given in detail in V. We shall summarize here only the main steps used in the analysis:

- (a) Each definitely identified  $\Sigma^-$  at rest (namely, each baryon coming to rest and producing a two or more prong star, or a star with only one prong longer than  $200\ \mu$ ) was assumed to be equivalent to 2.6  $\Sigma^-$ -hyperons emitted. This  $\Sigma^-$ -prong correction factor was obtained by using world statistics of  $K^-$ -absorption on free protons in nuclear plates.
- (b) The slow (below 50 MeV) unidentified  $\Sigma^\pm$ -hyperons (6 events) were divided by arguments concerning the  $\Sigma$ -life time and the energy spectrum.
- (c) A small tail (5 events) of  $2N$ - $\Sigma$ 's was assumed to be among the slow  $1N$ - $\Sigma$ 's.

Using these corrections (see V) the following  $1N$ -emission values were obtained:

Table 2  
Corrected  $1N$ - $\Sigma$ -hyperon emission values

Type of event	Numbers emitted
$(\Sigma^- + \pi^+) \dots\dots\dots$	39
$(\Sigma^- + 0\ \pi) \dots\dots\dots$	46
All $\Sigma^- \dots\dots\dots$	85
$(\Sigma^+ + \pi^-) \dots\dots\dots$	54
$(\Sigma^+ + 0\ \pi) \dots\dots\dots$	10
All $\Sigma^+ \dots\dots\dots$	64
All $1N$ - $\Sigma$ -hyperons $\dots\dots$	149

4. The Pion and  $\Sigma$ -Hyperon Emission Probabilities

The pion and  $\Sigma$ -hyperon experimental emission probabilities which have been used before (see III and IV), namely:

$$\begin{aligned} E_{\pi^-} &= \frac{N(\pi^-, \Sigma^+)_{em}}{N(\Sigma^+)_{em}} \\ E_{\Sigma^-} &= \frac{N(\pi^+, \Sigma^-)_{em}}{N(\pi^+)_{em}} \end{aligned} \tag{1}$$

could be somewhat biased since the production directions of the pion and hyperon are correlated (see Figures 4 and 5 below), and peaked at large angles. Thus, an observed  $\Sigma^+$ -hyperon (or  $\pi^+$ -meson) could be preferentially due to an emission direction away from the center of the nucleus, and its  $\pi^-$  (or  $\Sigma^-$ ) partner would be travelling in the direction of a large nucleon density which would result in a stronger absorption. One has to

correct, therefore, for the above correlation. The correction will depend somewhat on the model assumed for the  $K^-$ -capture, but since it is small anyhow, the corrected emission probabilities will not be very sensitive to the model assumed.

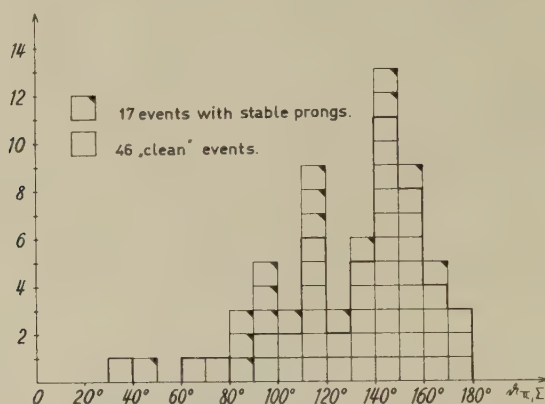


Fig. 4

Distribution of angles between  $\pi$ - and  $\Sigma$ -emission directions in  $(\pi, \Sigma)$  events

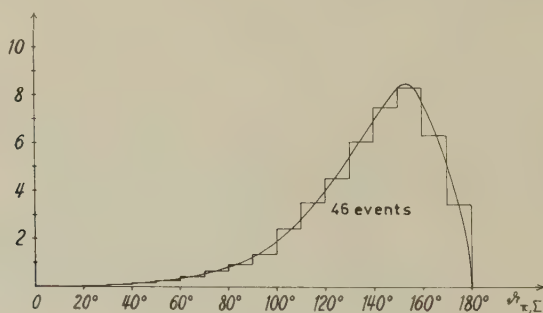


Fig. 5

Distribution of angles between  $\pi$ - and  $\Sigma$ -emission directions in  $(\pi, \Sigma)$  events, calculated from a nucleon momentum distribution  $\sim p^2 e^{-p^2/a^2}$  ( $a = 170 \text{ MeV}/c$ ), assuming the  $1/v_{\text{rel}}$ -law.

Since one needs here the use of a distinct model we shall take for these considerations the peripheral model, but we must emphasize that this does not mean that we commit ourselves with this assumption. It only means that a peripheral model would be in good agreement with the results or e. g. angular distribution in  $(\pi, \Sigma)$ -events, the distribution of  $(T_\pi + T_\Sigma)$  (Figure 6) the large percentage of clean  $(\pi, \Sigma)$ -events and the small values of  $A_\pi$ .

We shall thus assume a peripheral absorption in the calculation of the  $\pi^-$  and  $\Sigma^-$ -emission probability. As was stated before, the results will not be sensitive to this assumption.

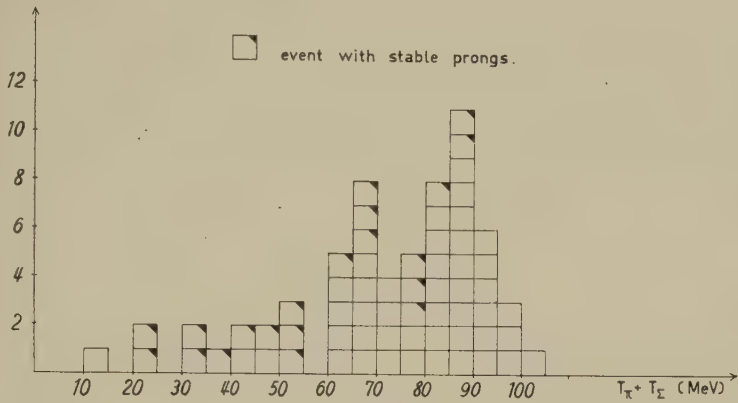


Fig. 6  
Distribution of  $(T_\pi + T_\Sigma)$  obtained from 64  $(\pi, \Sigma^-)$ -events

In general, for any capture model, the relation between the experimentally observed emission probability  $E_a^*$  of particle a and the correct emission of particle b ( $E_b$ ) is given by:

$$E_a^* = \frac{E_{a,b}}{E_b} \tag{2}$$

This is identical to relation (1) above. Here  $E_{a,b}$  is the probability for simultaneous emission of particles a, b. The relation between  $E_{a,b}$  and  $E_a$  and  $E_b$  is more complicated and will depend upon the model assumed. This is given in detail in the appendix. We are thus able to calculate from our experimental values the corrected  $\pi^-$ - and  $\Sigma^-$ -emission probabilities. But we can also determine directly  $E_{\Sigma^-}$  (see appendix) from

Table 3  
Emission probabilities

Particle	Corrected emission probabilities
$\pi^+$ in associated $(\pi, \Sigma^-)$ production . . .	$E_{\pi^+}^{(\Sigma^-)} = 0.91 \pm 0.05$
$\pi^-$ in associated $(\pi^-, \Lambda^0)$ production . .	$E_{\pi^-}^{(\Lambda^0)} = 0.8 \pm 0.1$
$1N-\Sigma^+$ -hyperon . . . . .	$E_{\Sigma^+} = 0.52 \pm 0.06$
$1N-\Sigma^-$ -hyperon . . . . .	$E_{\Sigma^-} = 0.43 \pm 0.05$
simultaneous $\Sigma^+$ and $\pi^-$ emission . . .	$E_{\pi^-, \Sigma^+} = 0.44$
simultaneous $\Sigma^-$ and $\pi^+$ emission . . .	$E_{\pi^+, \Sigma^-} = 0.36$



a detailed study of the fast protons (above 30 MeV) associated with the  $\pi$ -events. The final emission values, given in Table 2 below, were obtained by requiring best agreement with our observational values. We had no way of determining directly from our experiment  $E_{\pi}^{(A)}$  (the emission probability of the  $\pi^-$  associated with a direct  $\pi^- \Lambda^0$ -production). It is expected to be smaller than  $E_{\pi}^{(Z)}$ , since the pion interaction cross-section rises in this energy range. By using  $\pi^-$ -interaction data and figure 7 (appendix) we get:  $E_{\pi}^{(A)} = 0.8 \pm 0.1$ . This value, together with the other emission probabilities in Table 3 will be used in the next section for determining all the  $1N$ -reaction rates.

### 5. The Single Nucleon Reaction Rates

The following are the seven possible reactions resulting from  $K^-$ -absorptions on single nucleons:

	Reaction	Reaction rate
(1)	$K^- + p \rightarrow \pi^+ + \Sigma^-$	$r^2 + 2/3 + 2 \sqrt{2/3} r \cos \varphi$
(2)	$\rightarrow \pi^- + \Sigma^+$	$r^2 + 2/3 - 2 \sqrt{2/3} r \cos \varphi$
(3)	$\rightarrow \pi^0 + \Sigma^0$	$2/3$
(4)	$\rightarrow \pi^0 + \Lambda^0$	$2 r_A^2$
(5)	$K^- + n \rightarrow \pi^0 + \Sigma^-$	$2 r^2$
(6)	$\rightarrow \pi^- + \Sigma^0$	$2 r^2$
(7)	$\rightarrow \pi^- + \Lambda^0$	$4 r_A^2$

The reaction rates were obtained for a self-conjugate nucleus (number of neutrons equals number of protons) by assuming charge independence (see III for details). For comparison with actual emulsion experiments, the neutron reactions should be multiplied by 1.27 (the average  $n/p$  ratio in emulsions, assuming a modified Fermi-Teller  $Z$  capture law<sup>6</sup>), which yields 30% captures in CNO and 70% in AgBr). The matrix elements (see III) are:

$$r \cdot e^{i\varphi} = \frac{\langle T=1 | H_{\Sigma} | T=1 \rangle}{\langle T=0 | H_{\Sigma} | T=0 \rangle}, \quad |r_A| = \left| \frac{\langle T=1 | H_{\Lambda} | T=1 \rangle}{\langle T=0 | H_{\Sigma} | T=0 \rangle} \right|$$

From the pion and  $\Sigma$ -hyperon emission values (sections 2 and 3 respectively) and by using the emission probabilities given in section 4, we can derive all the single nucleon production values, assuming charge independence. The method has been discussed before in detail in IV. We shall, therefore, mention it very briefly here. Let  $N(\ )_{\text{em}}$  be the emission values of the particles in the brackets, and let  $N(\ )_{\text{prod}}$  be the production values of the bracketed particles. Then, from the result of section 4 we get:

$$N(\pi^+ \Sigma^-)_{\text{prod}} = \frac{N(\pi^+)_{\text{em}}}{E_{\pi^+}} \quad (1)$$

$$N(\pi^- \Sigma^+)_{\text{prod}} = \frac{N_2(\pi^- \Sigma^+)_{\text{em}}}{E_{\pi^- \Sigma^+}} \tag{2}$$

$$N(\pi^0 \Sigma^-)_{\text{prod}} = \frac{1}{E_{\Sigma^-}} \{ N(0 \pi, \Sigma^-)_{\text{em}} - [E_{\Sigma^-} - E_{\Sigma^- \pi^+}] N(\pi^+ \Sigma^-)_{\text{prod}} \} \tag{5}$$

$$N(\pi^- \Sigma^0)_{\text{prod}} = N(\pi^0 \Sigma^-)_{\text{prod}}, \text{ by charge independence} \tag{6}$$

$$N(\pi^- \Lambda^0)_{\text{prod}} = \frac{1}{E_{\pi^-}^{(\Lambda)}} \{ N(\pi^-)_{\text{em}} - E_{\pi^-}^{(\Sigma)} [N(\pi^- \Sigma^+)_{\text{prod}} + N(\pi^- \Sigma^0)_{\text{prod}}] \} \tag{7}$$

and again by charge independence:

$$N(\pi^0 \Sigma^0)_{\text{prod}} = \frac{1}{2} [N(\pi^+ \Sigma^-)_{\text{prod}} + N(\pi^- \Sigma^+)_{\text{prod}} - \frac{1}{1.27} N(\pi^0 \Sigma^-)_{\text{prod}}] \tag{3}$$

$$N(\pi^0 \Lambda^0)_{\text{prod}} = \frac{1}{2.54} N(\pi^- \Lambda^0)_{\text{prod}}. \tag{4}$$

The final reaction rates obtained in this experiment are summarized in Table 4 below. They are in fair agreement with the results of the  $K^-$ -Collaboration<sup>1</sup>). The errors quoted are statistical as well as syste-

Table 4

Reaction	Production values	
	Numbers	Percentages
(1) $\pi^+ \Sigma^-$ . . . .	$88 \pm 12$	$12.6 \pm 1.7$
(2) $\pi^- \Sigma^+$ . . . .	$123 \pm 26$	$17.7 \pm 3.6$
(3) $\pi^0 \Sigma^0$ . . . .	$68 \pm 17$	$9.7 \pm 2.4$
(4) $\pi^0 \Lambda^0$ . . . .	$65 \pm 22$	$9.3 \pm 3.1$
(5) $\pi^0 \Sigma^-$ . . . .	$95 \pm 30$	$13.6 \pm 4.3$
(6) $\pi^- \Sigma^0$ . . . .	$95 \pm 30$	$13.6 \pm 4.3$
(7) $\pi^- \Lambda^0$ . . . .	$164 \pm 56$	$23.5 \pm 8.0$
All . . . . .	$698 \pm 52$	100%

matic, coming mostly from uncertainties in the emission probabilities and the  $\Sigma^-$ -correction factor (section 3).

The relative number of single nucleon captures in  $K^-$ -absorptions at rest in nuclear emulsions is then:  $(698 \pm 52)/1104 = 63\% \pm 4.5\%$ . This number is in agreement with the recently published number ( $\sim 30\%$   $2N$ -capture) by the  $K^-$ -Collaboration (Kiev reports, 1959). We wish to emphasize that this number is not sensitive to the ratio of heavy to light nuclei capture assumed. The error in the total number of  $1N$ -captures is essentially determined by the statistical error in the number of observed pions ( $\sim 400$  events) and by the systematic error in the pion absorption probabilities. But since the pion absorption probability is any-

how small, the total number of  $1N$ -captures is not very sensitive to it. Also, one should note that the errors of the individual reaction rates are correlated (see method of derivation of the reaction rates outlined above).

Recently<sup>4)</sup>, the absorption of  $K^-$  at rest in deuterium and the  $K^-$ - $p$  interaction at flight has been studied by the Berkeley Bubble Chamber Groups. All the published single nucleon reaction rates for the various experiments are given in Table 5. The single nucleon reaction rates in deuterium were derived<sup>\*)</sup> from the data published by the  $D$ -Bubble Chamber-Group<sup>4)</sup> by assuming charge independence and by taking into account only  $\Sigma \rightarrow \Lambda$ -transition. The  $\Sigma$ -charge exchange probability is probably small<sup>\*)</sup> and was neglected. By studying Table 5 it becomes clear, as was pointed out in III, that the  $K^-$ -nucleon interaction depends rather strongly upon the relative  $K^-$ - $N$ -momentum. In particular, the large change in  $\cos\varphi$  (the phase angle between the  $T = 1$  and  $T = 0$  matrix elements) between  $\bar{P}_{\text{rel}} = 0$  and  $\bar{P}_{\text{rel}} = 70$  MeV/c is apparent. Later on,  $\varphi$  does not seem to depend anymore upon the energy. On the other hand, with the increase of  $\bar{P}_{\text{rel}}$ , the  $T = 1$  state, both for the  $\Sigma$  and  $\Lambda$ -reactions, seems to become more and more dominant. Thus also neutron captures seem to become more important at high  $\bar{P}_{\text{rel}}$  values than at lower ones. The increase in direct  $\Lambda$ -production is opposite to what one would expect from simple phase-space arguments. The normalizing momentum phase-space factor  $(\bar{P}_{\Sigma}^{CM}/\bar{P}_{\Lambda}^{CM})^2$  varies only from  $\sim 0.5$  to  $\sim 0.6$  in the energy range considered here. Thus the  $\Sigma$ - and  $\Lambda$ -reactions seem to depend differently upon  $\bar{P}_{\text{rel}}$ .

## 6. The Relative Yield of $1N$ and $2N$ Reactions in $K^-$ Captures in Heavy and Light Nuclei

A systematic search was conducted for electrons associated with  $K^-$ -absorptions giving rise to  $\pi$ -mesons and slow  $\Sigma$ -hyperons and to fast (over 50 MeV)  $\Sigma$ -hyperons and fast (over 60 MeV) protons. The first class of events represents certain  $1N$ -absorptions and the second class certain  $2N$ -absorptions. The results of this search are summarized in Table 6.

A certain electron had to have over 4 grains (15 keV). Questionable electrons are followed by a questionmark. The final yield was obtained by taking into account half the questionable electrons and by correcting for random background electrons the yield of which was determined from proton endings.

From Table 6 it becomes clear that the yield of electrons is significantly larger in certain  $2N$ -absorptions than in certain  $1N$ -absorptions. Also,

\*) Y. EISENBERG and D. KESSLER, private communication.

Table 5

Comparison of the single nucleon reaction rates for a self-conjugate nucleus  
(number of protons equals to the number of neutrons)

Reaction	Observed Rates in Percentages			
	$H$ -bubble chamber $K^-$ at rest $\bar{P}_{\text{rel}} = 0$	$D$ -bubble chamber $K^-$ at rest $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 70 \text{ MeV/c}$	Present exp. $K^-$ at rest, emuls. $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 120 \text{ MeV/c}$	Bern results (III) $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 380 \text{ MeV/c}$
$K^- p \rightarrow \pi^+ \Sigma^-$ $\pi^- \Sigma^+$ $\pi^0 \Sigma^0$ $\pi^0 \Lambda^0$ $K^- n \rightarrow \pi^0 \Sigma^-$ $\pi^- \Sigma^0$ $\pi^- \Lambda^0$	32.6	20.8	14.1	9.6
	15.2	28.7	19.8	14.2
	19.6	21.0	10.9	4.7
	5.1	4.9	10.3	14.3
	8.7	7.4	12.1	14.3
	8.7	7.4	12.1	14.3
$K^- p \rightarrow \pi^+ \Sigma^-$ $\pi^- \Sigma^+$ $\pi^0 \Sigma^0$ $\pi^0 \Lambda^0$ $K^- n \rightarrow \pi^0 \Sigma^-$ $\pi^- \Sigma^0$ $\pi^- \Lambda^0$	10.1	9.8	20.7	28.6
Numbers of events studied	large. errors are $\sim 2\%$	1650	1100	415
$\nu^2$ $\nu^2_{\Lambda}$ $\cos \varphi$ $\varphi$ Direct $\Sigma$ prod. Direct $\Lambda$ prod.	0.15	0.12	0.37	1
	0.086	0.08	0.32	1
	0.47	-0.22	-0.18	-0.2
	62°	103°	100°	102°
	84.8%	85.3%	69%	57%
	15.2°	14.7%	31%	43%
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				
$H$ -bubble chamber $K^-$ at flight $\bar{P}_{\text{rel}} \approx 420 \text{ MeV/c}$				

Table 6  
Electrons associated with  $K^-$ -capture stars

Type of event	No. of events	Observed Number of					I + II + $+\frac{1}{2}(III + IV)$		Yield in %
		I Blob + $\varepsilon$	II $\varepsilon$	III Blob + $\varepsilon(?)$	IV $\varepsilon(?)$	V Blob	ob- served	cor- rected	
$(\pi, \Sigma)$	65	2	3	2	3	7	7.5	6	$9.4\% \pm 3.8\%$
Certain 1N	411	33	32	19	21	56	85	75	$18.2\% \pm 2.1\%$
Certain 2N	151	14	24	8	10	16	47	43.4	$28.7\% \pm 4.4\%$

when both  $\pi$  and  $\Sigma$  are emitted ( $(\pi, \Sigma)$ -events) the yield seems to be particularly low. Since one expects to find more electrons (both Auger electrons and any others too) associated with  $K^-$ -captures in the heavy emulsion nuclei than with captures in the light nuclei, the above observation indicates quite strongly that captures in AgBr lead more often to a multi-nucleon reaction than  $K^-$ -capture in CNO. For a more quantitative statement one needs to know the proportion of  $K^-$ -captures in CNO and AgBr, and also the yield of electrons upon capture in the various elements. This, unfortunately, is not very well known. If one makes the extreme assumption (which is perhaps not so bad) that  $K^-$ -capture in CNO does not yield any electron emission, we have carried out the analysis for the two possible capture mechanisms: heavy/light absorption ratio is 7/3 (Fermi-Teller Z-law<sup>6</sup>), and heavy/light = 1:1. The results of this analysis are given in Table 7. It seems, for both assumptions, that

Table 7  
1N and 2N absorption yield in light and heavy nuclei

Assumed $K^-$ -capture ratio, heavy/light =	7:3	1:1	
Then: of all 1N reactions . . . . .	58%	41%	in heavy elem.
of all 2N reactions . . . . .	91%	65%	in heavy elem.
Or: in heavy elements . . . . .	48%	48%	2N reactions
in light elements . . . . .	11%	26%	2N reactions

the 2N-capture occurs mostly in the heavy emulsion nuclei. It should be emphasized that the above yield of the 2N-reaction in AgBr is only a lower limit. If the yield of electrons from the light elements is different from zero, using our experimental values, we obtain that more of the 2N-reactions take place in the heavier elements and less in the light elements. The recent data<sup>4</sup>) of the Deuterium bubble chamber group also indicate that the 2N-reaction yield in  $K^-$ -captures in D is very small.



## 7. Conclusions

We would like to summarize now, briefly, the main conclusions reached in the present works.

(1) The single nucleon  $K^-$ -captures form  $63\% \pm 5\%$  of all  $K^-$ -absorptions at rest in nuclear emulsions. The multi-nucleon  $K^-$ -capture mode forms then  $37\% \pm 5\%$  of all  $K^-$ -absorptions. No evidence of a substantial  $2N$ -capture mode was found in the interactions of fast  $K^-$ -mesons in nuclear emulsions (III, 14).

(2) The single nucleon  $K^-$ -capture matrix elements are energy dependent (see Table 5 section 6). In particular, if the relative C. M.  $K^-$ -nucleon momentum increases, we get that:

- (i) The direct  $\Lambda^0$ -production increases (see section 6 and 3).
- (ii) The  $T = 1$  state  $K^-$ -captures become relatively more and more important, and therefore the neutron to proton  $K^-$ -absorption ratio increases.
- (iii) As soon as  $\bar{P}_{\text{rel}}$  is different from zero, the phase angle between the  $T = 1$  and  $T = 0$  matrix elements changes rapidly. At higher  $\bar{P}_{\text{rel}}$  values, it does not seem to change any more. It might be due to the fact that for  $\bar{P}_{\text{rel}} = 0$ , only pure  $S$  - wave captures take place<sup>10</sup>).

(3) An examination of slow electrons associated with certain  $1N$ - $K^-$ -captures and certain  $2N$ - $K^-$ -captures indicates quite strongly that the  $2N$ -processes occur mostly in the heavy elements of the nuclear emulsion. It seems also (but statistically less significant) that events with associated  $\pi + \Sigma$ -emission occur mostly in the light emulsion elements.

(4) Generally speaking, our single nucleon  $K^-$ -captures data seem to be in agreement with the assumption of peripheral absorptions, but do not exclude the possibility of other capture models. Peripheral absorption is expected from a detailed calculation of a  $K^-$ -cascade in emulsion atoms<sup>77</sup>) (taking into account the nuclear matter distribution), and is in agreement with our observations of a very small pion absorption probability, a large correlation both in energy and angle between the pion and  $\Sigma$ -hyperon in the associated  $(\pi, \Sigma)$  events.

(5) Within the framework of our model the  $\pi$ -absorption probability agrees with the pion interaction data (8. 9). The  $\Sigma$ -hyperon absorption probability is much larger, which indicates a very small  $\Sigma$ -interaction ( $\Sigma \rightarrow \Lambda$ ) mean free path in nuclear matter. This statement becomes even stronger if one considers points (3) and (4) above.

(6) The  $\Sigma$  and  $\pi$ -charge exchange scattering is small. Only one probable event of a  $\Sigma$  (or  $\pi$ ) charge exchange scattering inside the nucleus in which the particles were produced, was found. (This is the only published event of that type.)

Our sincere thanks are due to Drs. LOFGREN, JAUNEAU and TEUCHER who exposed the stack for us at the Bevatron. We are especially indebted to Profs. F. G. HOUTERMANS and CH. PEYROU for their continuous interest and many helpful discussions during all the phases of the work. Furthermore we got an interesting suggestion from Dr. E. MARQUIT.

The scanning team did efficient work. We are grateful to Mrs. B. ALBRECHT, E. BLASER, B. DZIUMBLA, E. KOCH, CH. PLUMETTAZ, I. RITSCHARD and S. SCHILT. Mrs. B. ALBRECHT, CH. PLUMETTAZ and I. RITSCHARD made precise measurements for us.

Our further thanks are due to the Schweizerische Studienkommission für Atomenergie, to the Kommission für Atomwissenschaften and to the Schweizer Nationalfonds for financial support of this work.

## APPENDIX

### A. Combined Emission Probabilities

When two particles  $a$  and  $b$  are produced inside the nucleus an approximate emission probability  $E_a^*$  for particle  $a$  is given by the number of events, where  $a$  and  $b$  were emitted  $N(a, b)_{\text{em}}$  and the number of events where  $a$  was absorbed and only  $b$  was emitted  $N(0a, b)_{\text{em}}$ .

$$E_a^* = \frac{N(a, b)_{\text{em}}}{N(a, b)_{\text{em}} + N(0a, b)_{\text{em}}} = \frac{E_{a,b}}{E_b} \quad (1)$$

We shall calculate now the correction which has to be applied to  $E_a^*$  in order to get the true emission probability  $E_a$ , defined by:

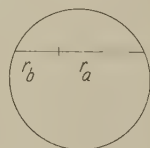
$$E_a = \frac{N(a)_{\text{emitted}}}{N(a)_{\text{produced}}} \quad (2)$$

$E_a^*$  is different from  $E_a$  when the emission directions of  $a$  and  $b$  are correlated. The relation between  $E_a^*$  and  $E_a$  will depend upon the angular correlation between  $a$  and  $b$ , and upon the production position in the nucleus. The calculation will be carried out for particles emitted in opposite directions under two assumptions: (a) homogeneous production throughout the entire nuclear volume, and (b) surface production.

Each emission probability can be written as a product of two factors,  $e$  and  $T$ .  $e$  is the emission probability for a nucleus having no potential barrier (depending only on the mean free path  $\lambda$  in nuclear matter, and  $T$  is the probability for the surface transmission (see also ref. 11).

For the homogeneous production we have:

$$e_{a,b}^{\text{hom}} = \int_{\text{Volume}} e^{-\frac{r_a}{\lambda_a}} e^{-\frac{r_b}{\lambda_b}} dV$$



or, after integration:

$$e_{a,b}^{\text{hom}} = \frac{3}{\Delta_a - \Delta_b} \left\{ \frac{1}{\Delta_b^2} [1 - (1 + \Delta_b) e^{-\Delta_b}] - \frac{1}{\Delta_a^2} [1 - (1 + \Delta_a) e^{-\Delta_a}] \right\} \quad (3)$$

where  $\Delta_a = 2R/\lambda_a$ ,  $\Delta_b = 2R/\lambda_b$  and  $R$  is the nuclear radius. Note that for the limiting case  $\Delta_b \rightarrow 0$ , we get CAPP's<sup>11)</sup> formula:

$$e^{\text{hom}} = \frac{3}{\Delta^3} \left[ \frac{1}{2} \Delta^2 + (1 + \Delta) e^{-\Delta} - 1 \right]. \quad (4)$$

$e^{\text{hom}}$  as a function of  $\Delta$  is plotted in Figure 7.  $e_{a,b}$  can be written, by using (4), as a function of  $e_a$  and  $e_b$ . Since we have:

$$E = e \cdot T, \quad \text{and} \quad E_{a,b} = T_a \cdot T_b \cdot e_{a,b} \quad (5)$$

the true  $E_a$  can now be calculated from the experimental  $E_a^*$  (see (1) above) if  $E_b$ ,  $T_a$  and  $T_b$  are known. If only  $E_a^*$  and  $E_b^*$  are known then by successive iterations (knowing  $T_a$  and  $T_b$ )  $E_a$  and  $E_b$  can be calculated.

For the surface model we have:

$$e^{\text{sur.}} = 1/2 + 1/2 \Delta (1 - e^{-\Delta}). \quad (6)$$

$e^{\text{sur.}}$  as a function of  $\Delta$  is also plotted in Figure 7. In this case one gets immediately:

$$e_{a,b}^{\text{sur.}} = e_a^{\text{sur.}} + e_b^{\text{sur.}} - 1, \quad (7)$$

and by (1) we obtain:

$$e_a^{\text{sur.}} = 1 - e_b (1 - e_a^*). \quad (8)$$

Note that due to the linearity of (7), these relations are also valid for any mixture of nuclei, namely we always have:

$$\bar{e}_{a,b}^{\text{sur.}} = \bar{e}_a^{\text{sur.}} + \bar{e}_b^{\text{sur.}} - 1. \quad (7')$$

The emission probabilities for particles produced at different distances  $r = aR$  from the center of the nucleus have been calculated for  $a = 0.6$ ;  $0.8$ ;  $0.9$  and  $1$  ( $\equiv$  surface model) as functions of  $\Delta$  and are plotted in Figure 7. In the case  $a = r/R = 0.8$  the emission probabilities are at least for small  $\Delta$  the same as in the case of the homogeneous model.

In the present experiment, due to the relatively high energy of the pions produced, we have assumed.  $T_{\pi^+} = T_{\pi^-} = 1$ . For the  $\Sigma$ -hyperons, using Capp's internal production spectrum<sup>11)</sup>, a  $\Sigma$ -nuclear potential of  $-10$  MeV, and a Coulomb potential of  $\pm 9$  MeV for the heavy emulsion nuclei and  $\pm 3$  MeV for the light emulsion nuclei, we get (classically):

$$T_{\Sigma^+} = T_{\Sigma^0} = 0.86, \quad T_{\Sigma^-} = 0.68. \quad (9)$$

From (1), (7), (8) and (9) one can, in principle, calculate the individual  $\pi$  and  $\Sigma$ -emission probability as well as the combined emission probability  $E_{\pi, \Sigma}$ .

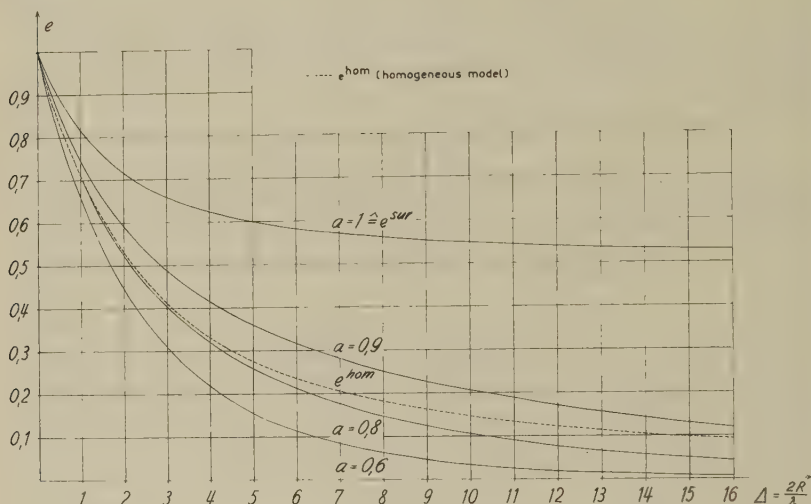


Fig. 7

Emission probabilities in dependence of  $\Delta = 2R/\lambda$  for particles produced at different distances  $r = aR$  from the center of the nucleus

### B. The $\pi$ and $\Sigma$ emission probabilities

The  $\Sigma^-$ -emission probability is obtained directly from our experimental values (see section 2):

$$E^* = \frac{N(\pi^+, \Sigma^-)_{\text{em}}}{N(\pi^+, \Sigma^-)_{\text{em}} + N(\pi^+, 0\Sigma)} = \frac{39}{80} = 0.49 \pm 0.14 \quad (1)$$

Similarly, the emission probability of  $\pi^-$ -mesons associated with  $\Sigma$ -production is:  $E_{\pi^-}^{(\Sigma)*} = 54/64 = 0.85 \pm 0.1$ . With the help of part A above, one gets for the corrected emission probabilities:

$$E_{\Sigma^-} = 0.50, \quad E_{\pi^-}^{(\Sigma)} = 0.89. \quad (2)$$

From this value of  $E_{\Sigma^-}$ , using the results of A above and the neutron/proton ratio in emulsions, one can calculate  $E_{\Sigma^+}$  and  $E_{\Sigma^0}$ . We thus get:

$$E_{\Sigma^+} = 0.61 \pm 0.17. \quad (3)$$

However,  $E_{\Sigma^+}$  could also be determined from the analysis of fast protons associated with  $(\pi^-, 0\Sigma)$  events. This will be demonstrated now.

By comparing the fast ( $> 30$  MeV) proton yield in  $(\pi^+, 0\Sigma)$  and  $(\pi^-, 0\Sigma)$  events (see Table 1 of V), it becomes clear that the  $\Sigma^-$ -absorp-

tions are seldom associated with the emission of fast protons, in contrast to  $\Sigma^+$  and  $\Sigma^-$ -absorptions. This is expected, since only neutral particles are produced in  $\Sigma^-$ -captures. The total number of fast ( $> 30$  MeV) protons observed in our entire (corrected) sample of  $(\pi^-, 0 \Sigma)$  events was 79. From this number one has to subtract the contribution of fast ( $> 30$  MeV) protons from: (1) inelastic scattering of  $\pi^-$  (or  $\Lambda^0$ ) produced in the  $(\pi^- \Lambda^0)$ -reaction, (2) decays of cryptofragments (inseparable hyperfragments). The fast ( $> 30$  MeV) proton yield in the inelastic scattering of  $\pi^-$  (having similar energy as the  $\pi^-$ 's from the  $(\pi^- \Lambda^0)$ -reaction) is small—about 10%<sup>12</sup>). Thus we may use our a-posteriori knowledge of the  $(\pi^- \Lambda^0)$ -production value ( $\approx 160$  events) for estimating the contribution to fast protons from (1) above. This contribution will not depend strongly upon the exact  $K^-$ -capture model, since the inelastic scattering cross section (in our energy range) is about geometric<sup>3</sup>), and since in the surface model, whenever the pion escapes without going through nuclear matter, the  $\Lambda^0$  will go through the nucleus and could also produce fast knock-on protons. Thus, process (1) will give about 16 fast ( $> 30$  MeV) protons associated with  $(\pi^-, 0 \Sigma)$  events. Process (2) above (cryptofragment decays) contributes very little to the fast proton formation, and can be roughly estimated by the following arguments: The direct and indirect ( $\Sigma + N \rightarrow \Lambda^0 + N$ ) energy spectra are very similar (see III). Thus, the cryptofragment formation yield per  $\Lambda^0$  traversing the nucleus is expected to be the same in both cases. Since the  $\Sigma$ -absorption probabilities are about 0.5, and since also about 50% of the  $\Lambda$ 's (in the surface model) go through the nucleus, the cryptofragment yield per observed pion is roughly constant. Thus we may use our  $(\pi^+, 0 \Sigma)$  events for getting the number of fast ( $> 30$  MeV) protons arising from process (2). Since the  $(\pi^+, 0 \Sigma)$  events are very seldom associated with fast protons, we estimate that process (2) would yield about 5 fast ( $> 30$  MeV) protons in our entire 276  $(\pi^-, 0 \Sigma)$  events. The rest—namely  $79 - 16 - 8 = 55$  events—originate then from  $\Sigma^+$  and  $\Sigma_p^-$ -absorption. The total number of  $\Sigma^+$ - and  $\Sigma_p^-$ -absorptions was determined by extrapolating the energy spectrum of the fast ( $> 30$  MeV) protons in the  $(\pi^-, 0 \Sigma)$  events to zero energy. We thus get  $88 \pm 18$   $\Sigma^+$  and  $\Sigma_p^-$ -absorptions. Assuming that the fast proton yield in  $\Sigma^-$ -captures is 1/2 that of  $\Sigma^+$ -captures, we get:

$$88 = (E_{\pi^-} - E_{\pi^-, \Sigma^+}) N(\pi^- \Sigma^+)_{\text{prod}} + 1/2 (E_{\pi^-} - E_{\pi^-, \Sigma^-}) N(\pi^- \Sigma^-)_{\text{prod}} \quad (4)$$

Since the production values depend upon  $E_{\Sigma^+}$  and the experimentally observed values, equation (4) can be solved for  $E_{\Sigma^+}$ , namely:  $E_{\Sigma^+} = 0.52 \pm 0.06$ . With the resulting  $e_{\Sigma^+}$  the experimental value  $E_{\pi^-}^{(\Sigma^+)*}$  was then corrected and found to be  $0.91 \pm 0.5$ . The error assumed is somewhat



smaller than our statistical error, since the same value of  $E_{\pi^-}^{(\Sigma)^*}$  was obtained by the  $K^-$ -Collaboration<sup>1)</sup>, too.

The final emission values used in the present experiment (see section 4) were obtained by a least square fit applied to (1)–(4) above.

### References

- I E. LOHRMANN, M. NIKOLIĆ, M. SCHNEEBERGER, P. WALOSCHEK, and H. WINZELER, *Nuovo Cimento* 7, 163 (1958).
- II Y. EISENBERG, W. KOCH, E. LOHRMANN, M. NIKOLIĆ, M. SCHNEEBERGER, and H. WINZELER, *Nuovo Cimento*, 8, 663 (1958).
- III Y. EISENBERG, W. KOCH, E. LOHRMANN, M. NIKOLIĆ, M. SCHNEEBERGER, and H. WINZELER, *Nuovo Cimento* 9, 745 (1958).
- IV Y. EISENBERG, W. KOCH, M. NIKOLIĆ, M. SCHNEEBERGER, and H. WINZELER, *Nuovo Cimento* 11, 351 (1959).
- V M. NIKOLIĆ, Y. EISENBERG, W. KOCH, M. SCHNEEBERGER, and H. WINZELER, *Helv. Phys. Acta* 3, 221 (1960).
- 1)  $K^-$ -Collaboration, Part. I: *Nuovo Cimento* 13, 690 (1959); Part II: Preprint 1959.
- 2) F. C. GILBERT, CH. E. VIOLET, and R. S. WHITE, *Phys. Rev.* 107, 228 (1957).
- 3) B. A. NIKOL'SKII, L. P. KUDRIN, and S. A. ALI-ZADE, *JEPT (USSR)* 32, 48 (Jan. 1957).
- 4) L. W. ALVAREZ, Kiev reports 1959.
- 5) S. C. FREDEN, F. C. GILBERT, and R. S. WHITE, Preprint 1959, UCRL 5629-T.
- 6) R. E. MASHAK, *Meson Physics*.
- 7) P. B. JONES, *Phil. Mag.* 3, 33 (1958), also private communication from Y. EISENBERG, and D. KESSLER.
- 8) G. FERRARI, L. FERRETTI, R. GESSAROLI, E. MANARESI, E. PEDRETTI, G. PUPPI, G. QUARENI, A. RANZI, A. STANGHETTINI, and S. STANTIC, *Nuovo Cimento Suppl. al. vol. 4*, 914 (1956).
- 9) R. H. MILLER, *Nuovo Cimento* 6, 882 (1957).
- 10) T. B. DAY, G. A. SNOW, and J. SUCHER, *Phys. Rev. Letters* 3, 61 (1959).
- 11) R. H. CAPPS, *Phys. Rev.* 107, 239 (1957).
- 12) Bologna Group: private communication to the  $K^-$ -Collaboration (see (1)).

# Über den Zusammenhang zwischen den Wightmanfunktionen und den retardierten Kommutatoren

von O. Steinmann

Physikalisches Institut der ETH, Zürich

(4. XII. 1959)

*Abstract.* The connection between Wightman's vacuum expectation values and the retarded functions of LEHMANN *et al.* is investigated in the case of the four point function. Necessary and sufficient conditions for the existence of a Wightman function corresponding to a given  $r(x_0, \dots, x_3)$  are derived. The Fourier transform  $\tilde{r}(p_1, p_2, p_3)$  of  $r(x_0 - x_1, \dots, x_0 - x_3)$  is a boundary value of an analytic function  $\tilde{r}(k_1, k_2, k_3)$ , regular in a domain  $\mathfrak{S}$  which is defined in the text. Certain boundary values of this function other than  $\tilde{r}(p_j)$  satisfy a linear identity. This identity enlarges the domain of regularity of  $\tilde{r}$  still further.

The Fourier transform  $\tilde{r}(p_1, p_2, p_3)$  of the time-ordered product  $\tau(x_0 - x_1, \dots) = < TA(x_0) \dots A(x_3) >_0$  is shown to be everywhere a boundary value of the same analytic function  $\tilde{r}(k_j)$ .

For the  $n$ -point case it is shown that  $W(x_0, \dots, x_{n-1})$ , if it exists at all, is uniquely determined by  $r(x_0, \dots, x_{n-1})$  up to terms of a very special kind.

## 1. Einleitung

In den letzten Jahren wurden in der Quantenfeldtheorie verschiedene Formalismen entwickelt, die zum Ziele haben, die Theorie einer exakten mathematischen Behandlung zugänglich zu machen. Sie versuchen durch Verzicht auf die Einführung der kanonischen Vertauschungsrelationen und eines explizit gegebenen Hamiltonoperators die bekannten Divergenzschwierigkeiten des herkömmlichen Formalismus zu vermeiden.

In diesen Versuchen spielen geeignet definierte Produkte von Feldoperatoren eine grosse Rolle. So hat A. WIGHTMAN die Vakuum Erwartungswerte der Produkte von Feldoperatoren in beliebigen Raum-Zeit-Punkten  $W_n(x_0, \dots, x_n) = < A(x_0) \dots A(x_n) >_0$  zu den grundlegenden Grössen der Theorie gemacht<sup>1)</sup>. Er studierte die Konsequenzen der Grundpostulate der Theorie (Lorentzinvarianz, Lokalität, Existenz des Vakuums, Definitheit der Metrik im Hilbertraum der Zustände) für diese Funktionen und zeigte, dass das System aller  $W_n$  die Theorie eindeutig festlegt. Leider kann der Teilchenbegriff (und damit im Zusammenhang die  $S$ -Matrix) nicht in einfacher Weise in den Formalismus eingeführt

werden. Ausser einer neuen, sehr durchsichtigen Ableitung des CTP-Theorems<sup>2)</sup> und des Zusammenhangs zwischen Spin und Statistik<sup>3)</sup> hat deshalb die Wightmansche Theorie keine praktischen Erfolge aufzuweisen.

Andererseits wird versucht, die Theorie aufzubauen als Theorie der  $S$ -Matrix. Dabei bietet besonders die Formulierung der Kausalitätsforderung Schwierigkeiten. Kausalität wird üblicherweise gleichgesetzt mit der Lokalität der betrachteten Felder, und es sind gegenwärtig zahlreiche Bemühungen im Gange, aus der Lokalitätsforderung Eigenschaften der  $S$ -Matrix herzuleiten (Dispersionsrelationen). Bei diesen Bemühungen haben sich die von LEHMANN *et al.*<sup>4)</sup> diskutierten  $r$ -Funktionen als geeignete Hilfsmittel erwiesen. Es handelt sich dabei um die Vakuum-erwartungswerte der sog. retardierten Kommutatoren (Definition siehe § 2) von  $n$  Feldoperatoren, also um mit den Wightmanfunktionen eng verwandte Grössen. Aus den oben angeführten Grundpostulaten der Theorie ergeben sich für die Fouriertransformierten der  $r$ -Funktionen Eigenschaften, die denjenigen der  $W$ -Funktionen bemerkenswert ähnlich sind. Der Zusammenhang mit der  $S$ -Matrix wird hergestellt mit Hilfe der sog. Asymptotenbedingung<sup>5)</sup>, welche Aussagen über das Verhalten des Feldes im limes  $t \rightarrow \pm \infty$  macht. Die positive Definitheit der Metrik ist eine Folge der Asymptotenbedingung und muss deshalb nicht besonders gefordert werden. Zusätzlich zu den erwähnten Eigenschaften, welche die individuellen Funktionen  $r_n$  betreffen, lässt sich aus dieser neuen Bedingung ein kompliziertes Gleichungssystem (GLZ Gl. 15) ableiten, das die verschiedenen  $r_n$  miteinander verknüpft. Wir wollen dieses System mit  $G$  bezeichnen. Die Funktionen  $r_n$  legen in ihrer Gesamtheit die Theorie wiederum eindeutig fest.

Es erhebt sich damit die Frage nach dem Zusammenhang zwischen den beiden Funktionensystemen  $\{W_n\}$  und  $\{r_n\}$ . Die Funktion  $r_n$  ist gemäss Definition auf algebraischem Wege aus  $W_n$  bestimmbar. Hat  $W_n$  die richtigen Eigenschaften, so erfüllt das daraus berechnete  $r_n$  alle Bedingungen, natürlich mit Ausnahme des Gleichungssystems  $G$ . Dieses wurde abgeleitet unter wesentlicher Benützung der Asymptotenbedingung und kann deshalb nicht aus den Eigenschaften der Wightmanfunktionen folgen. Ist umgekehrt ein System  $\{r_n\}$  von  $r$ -Funktionen mit den richtigen Eigenschaften – inklusive  $G$ ! – gegeben, so lässt sich der zugehörige Feldoperator und damit auch jede Wightmanfunktion berechnen. D. h. in diesem Falle sind die Definitionsgleichungen der  $r_n$  nach  $W_n$  auflösbar. Nun ist durch diese Gleichungen jedes  $r_n$  durch das zugehörige  $W_n$  bestimmt ohne Rücksicht auf die Funktionen anderer Variablenzahl. Stellt man also an die  $W_n$  nur diejenigen Forderungen, die sich auf die individuellen Funktionen beziehen (das sind alle mit Aus-

nahme eines aus der Definitheit der Metrik folgenden Systems von Ungleichungen), so müssen Lösbarkeitsbedingungen existieren, die sich auch nur auf die einzelnen  $r_n$  beziehen. Diese Bedingungen sollen in der vorliegenden Arbeit untersucht werden. Unser Problem ist somit das folgende: Unter welchen Voraussetzungen ist die Definitionsgleichung von  $r_n$  nach  $W_n$  auflösbar? Genügen dazu die bereits bekannten Eigenschaften von  $r_n$  (ohne  $G$ ) und wenn nicht, welche zusätzlichen Forderungen muss man stellen?

Das Problem ist trivial im Falle  $n = 1$ . Im Falle  $n = 2$  (d. h. für die Dreipunktfunktionen) wurde es gelöst durch R. JOST<sup>6</sup>). In beiden Fällen existiert eine algebraische Auflösungsformel, aus der man leicht alles Gewünschte ablesen kann. Neue Bedingungen für  $r_1$  und  $r_2$  ergeben sich nicht. Für höhere  $n$  ist eine algebraische Auflösung nicht mehr möglich; man muss zu analytischen Hilfsmitteln greifen. Wir werden hier nur den Fall  $n = 3$  vollständig diskutieren. Es wird sich zeigen, dass die bereits bekannten Bedingungen für  $r_3$  die Existenz von  $W_3$  nicht garantieren, sondern zu ergänzen sind durch weitere Forderungen. Diese zusätzlichen Forderungen müssten sich natürlich auch aus dem Gleichungssystem  $G$  ableiten lassen, doch ist dies auf direktem Wege noch nicht versucht worden. Für allgemeines  $n$  werden wir zeigen, dass die Funktion  $W_n$  durch  $r_n$  im wesentlichen eindeutig bestimmt ist, falls sie überhaupt existiert.

## 2. Formulierung des Problems

Das in der Einleitung gestellte Problem soll hier genauer formuliert werden. Dazu sollen zuerst die Eigenschaften der Funktionen  $W_n$  und  $r_n$  zusammengestellt werden, soweit wir sie in der vorliegenden Arbeit benötigen.

Einfachheitshalber betrachten wir nur den Fall eines einzigen Skalarfeldes  $A(x)$ . Die Verallgemeinerung auf kompliziertere Fälle bietet keine prinzipiellen Schwierigkeiten. Die Theorie soll den üblichen Forderungen genügen:

1. Die Zustandsvektoren bilden einen Hilbertraum mit positiv-definiter Metrik.
2. Die Theorie ist invariant gegen die inhomogene eigentliche Lorentzgruppe.
3. Die Theorie ist lokal, d. h.  $[A(x), A(y)] = 0$ , falls  $(x - y)$  raumartig ist.
4. Es existieren keine Zustände negativer Energie. Es existiert genau ein Zustand  $\Omega$  (das Vakuum) mit der Energie 0. (Die Existenz des Energieoperators folgt aus der in 2. postulierten Translationsinvarianz.)



werden. Ausser einer neuen, sehr durchsichtigen Ableitung des CTP-Theorems<sup>2)</sup> und des Zusammenhangs zwischen Spin und Statistik<sup>3)</sup> hat deshalb die Wightmansche Theorie keine praktischen Erfolge aufzuweisen.

Andererseits wird versucht, die Theorie aufzubauen als Theorie der  $S$ -Matrix. Dabei bietet besonders die Formulierung der Kausalitätsforderung Schwierigkeiten. Kausalität wird üblicherweise gleichgesetzt mit der Lokalität der betrachteten Felder, und es sind gegenwärtig zahlreiche Bemühungen im Gange, aus der Lokalitätsforderung Eigenschaften der  $S$ -Matrix herzuleiten (Dispersionsrelationen). Bei diesen Bemühungen haben sich die von LEHMANN *et al.*<sup>4)</sup> diskutierten  $r$ -Funktionen als geeignete Hilfsmittel erwiesen. Es handelt sich dabei um die Vakuum-erwartungswerte der sog. retardierten Kommutatoren (Definition siehe § 2) von  $n$  Feldoperatoren, also um mit den Wightmanfunktionen eng verwandte Grössen. Aus den oben angeführten Grundpostulaten der Theorie ergeben sich für die Fouriertransformierten der  $r$ -Funktionen Eigenschaften, die denjenigen der  $W$ -Funktionen bemerkenswert ähnlich sind. Der Zusammenhang mit der  $S$ -Matrix wird hergestellt mit Hilfe der sog. Asymptotenbedingung<sup>5)</sup>, welche Aussagen über das Verhalten des Feldes im limes  $t \rightarrow \pm \infty$  macht. Die positive Definitheit der Metrik ist eine Folge der Asymptotenbedingung und muss deshalb nicht besonders gefordert werden. Zusätzlich zu den erwähnten Eigenschaften, welche die individuellen Funktionen  $r_n$  betreffen, lässt sich aus dieser neuen Bedingung ein kompliziertes Gleichungssystem (GLZ Gl. 15) ableiten, das die verschiedenen  $r_n$  miteinander verknüpft. Wir wollen dieses System mit  $G$  bezeichnen. Die Funktionen  $r_n$  legen in ihrer Gesamtheit die Theorie wiederum eindeutig fest.

Es erhebt sich damit die Frage nach dem Zusammenhang zwischen den beiden Funktionensystemen  $\{W_n\}$  und  $\{r_n\}$ . Die Funktion  $r_n$  ist gemäss Definition auf algebraischem Wege aus  $W_n$  bestimmbar. Hat  $W_n$  die richtigen Eigenschaften, so erfüllt das daraus berechnete  $r_n$  alle Bedingungen, natürlich mit Ausnahme des Gleichungssystems  $G$ . Dieses wurde abgeleitet unter wesentlicher Benützung der Asymptotenbedingung und kann deshalb nicht aus den Eigenschaften der Wightmanfunktionen folgen. Ist umgekehrt ein System  $\{r_n\}$  von  $r$ -Funktionen mit den richtigen Eigenschaften – inklusive  $G$ ! – gegeben, so lässt sich der zugehörige Feldoperator und damit auch jede Wightmanfunktion berechnen. D. h. in diesem Falle sind die Definitionsgleichungen der  $r_n$  nach  $W_n$  auflösbar. Nun ist durch diese Gleichungen jedes  $r_n$  durch das zugehörige  $W_n$  bestimmt ohne Rücksicht auf die Funktionen anderer Variablenzahl. Stellt man also an die  $W_n$  nur diejenigen Forderungen, die sich auf die individuellen Funktionen beziehen (das sind alle mit Aus-



nahme eines aus der Definitheit der Metrik folgenden Systems von Ungleichungen), so müssen Lösbarkeitsbedingungen existieren, die sich auch nur auf die einzelnen  $r_n$  beziehen. Diese Bedingungen sollen in der vorliegenden Arbeit untersucht werden. Unser Problem ist somit das folgende: Unter welchen Voraussetzungen ist die Definitionsgleichung von  $r_n$  nach  $W_n$  auflösbar? Genügen dazu die bereits bekannten Eigenschaften von  $r_n$  (ohne  $G$ ) und wenn nicht, welche zusätzlichen Forderungen muss man stellen?

Das Problem ist trivial im Falle  $n = 1$ . Im Falle  $n = 2$  (d. h. für die Dreipunktfunktionen) wurde es gelöst durch R. Jost<sup>6)</sup>. In beiden Fällen existiert eine algebraische Auflösungsformel, aus der man leicht alles Gewünschte ablesen kann. Neue Bedingungen für  $r_1$  und  $r_2$  ergeben sich nicht. Für höhere  $n$  ist eine algebraische Auflösung nicht mehr möglich; man muss zu analytischen Hilfsmitteln greifen. Wir werden hier nur den Fall  $n = 3$  vollständig diskutieren. Es wird sich zeigen, dass die bereits bekannten Bedingungen für  $r_3$  die Existenz von  $W_3$  nicht garantieren, sondern zu ergänzen sind durch weitere Forderungen. Diese zusätzlichen Forderungen müssten sich natürlich auch aus dem Gleichungssystem  $G$  ableiten lassen, doch ist dies auf direktem Wege noch nicht versucht worden. Für allgemeines  $n$  werden wir zeigen, dass die Funktion  $W_n$  durch  $r_n$  im wesentlichen eindeutig bestimmt ist, falls sie überhaupt existiert.

## 2. Formulierung des Problems

Das in der Einleitung gestellte Problem soll hier genauer formuliert werden. Dazu sollen zuerst die Eigenschaften der Funktionen  $W_n$  und  $r_n$  zusammengestellt werden, soweit wir sie in der vorliegenden Arbeit benötigen.

Einfachheitshalber betrachten wir nur den Fall eines einzigen Skalarfeldes  $A(x)$ . Die Verallgemeinerung auf kompliziertere Fälle bietet keine prinzipiellen Schwierigkeiten. Die Theorie soll den üblichen Forderungen genügen:

1. Die Zustandsvektoren bilden einen Hilbertraum mit positiv-definiter Metrik.
2. Die Theorie ist invariant gegen die inhomogene eigentliche Lorentzgruppe.
3. Die Theorie ist lokal, d. h.  $[A(x), A(y)] = 0$ , falls  $(x - y)$  raumartig ist.
4. Es existieren keine Zustände negativer Energie. Es existiert genau ein Zustand  $\Omega$  (das Vakuum) mit der Energie 0. (Die Existenz des Energieoperators folgt aus der in 2. postulierten Translationsinvarianz.)

Die Lehmannsche Asymptotenbedingung<sup>5)</sup> oder ähnliche Forderungen werden wir hingegen nicht voraussetzen. Auch werden wir die Definitheit der Metrik nicht voll ausnützen.

Die *Wightmanfunktion*  $W_n(x_0, \dots, x_n)$  ist definiert durch

$$W_n(x_0, \dots, x_n) \equiv \langle A(x_0) \dots A(x_n) \rangle_0 \equiv (\Omega, A(x_0) \dots A(x_n) \Omega). \quad (1)$$

$W_n$  sowie auch alle im folgenden eingeführten Funktionen reeller Variablen sind aufzufassen als temperierte Distributionen im Sinne von L. SCHWARTZ<sup>7)</sup>. Wir werden der Einfachheit halber die Funktionenschreibweise benutzen, werden uns jedoch bei Bedarf auf die Theorie der Distributionen berufen, so dass die mathematische Exaktheit keinen Schaden leidet.

Aus den Postulaten 1. bis 4. ergeben sich folgende Eigenschaften der Wightmanfunktionen<sup>1)</sup>:

a)  $W_n(x_0, \dots, x_n)$  ist nur abhängig von den  $n$  Variablen

$$\eta_i = x_i - x_{i-1}, \quad i = 1, \dots, n, \quad (2)$$

also

$$W_n(x_0, \dots, x_n) = W_n(\eta_1, \dots, \eta_n). \quad (3)$$

Ferner ist  $W_n$  invariant gegen die eigentliche homogene Lorentzgruppe  $L_+^\uparrow$ :

$$W_n'(\eta_1, \dots, \eta_n) = W_n'(A\eta_1, \dots, A\eta_n) \text{ für alle } A \in L_+^\uparrow. \quad (4)$$

b) Die Fouriertransformierte

$$\tilde{W}_n(q_1, \dots, q_n) = \int \dots \int d^4 \eta_1 \dots d^4 \eta_n e^{-i \sum_k (q_k \eta_k)} W_n'(\eta_1, \dots, \eta_n) \quad (5)$$

von  $W_n'$  ist retardiert in allen Variablen, d. h.

$$\tilde{W}_n'(q_1, \dots, q_n) = 0, \quad \text{falls ein } q_k \notin \bar{V}_+, \quad (6)$$

wobei  $\bar{V}_+$  den abgeschlossenen Vorkegel bedeutet.

c) Es gilt

$$W_n(\dots, x_k, x_{k+1}, \dots) = W_n(\dots, x_{k+1}, x_k, \dots), \quad (7)$$

falls  $(x_k - x_{k+1})$  raumartig ist. Für  $W_n'$  wird diese Gleichung zu

$$W_n'(\dots, \eta_{k-1}, \eta_k, \eta_{k+1}, \dots) = W_n'(\dots, \eta_{k-1} + \eta_k, -\eta_k, \eta_k + \eta_{k+1}, \dots), \quad (8)$$

für raumartige  $\eta_k$ .

Daneben besteht noch ein kompliziertes System von Ungleichungen zwischen den verschiedenen  $W_n$ , das abgeleitet wird aus Postulat 1. Wir werden diese Ungleichungen jedoch nicht berücksichtigen.

Das *retardierte Produkt* von  $n + 1$  Feldoperatoren wird definiert durch

$$R(x_0, x_1, \dots, x_n) = \sum_{\gamma_n} \theta(x_0, x_1, \dots, x_n) [[\dots [A(x_0), A(x_1)], \dots], A(x_n)] \quad (9)$$

mit

$$\theta(x_0, x_1, \dots, x_n) = \begin{cases} 1 & \text{falls } x_0^0 > x_1^0 > \dots > x_n^0, \\ 0 & \text{sonst} \end{cases} \quad (10)$$

Die Summe in (9) ist über alle Permutationen der Variablen  $x_1, \dots, x_n$  zu erstrecken. Unsere Definition von  $R$  unterscheidet sich von der in LSZ gegebenen um einen Faktor  $(-i)^n$ . Da wir uns hier nicht mit Realitätseigenschaften befassen wollen, ist dieser Faktor unwesentlich.

Der Vakuumerwartungswert von  $R(x_0, \dots, x_n)$  heisst *retardierte Funktion* und wird mit  $r_n$  bezeichnet:

$$r_n(x_0, x_1, \dots, x_n) = \langle R(x_0, x_1, \dots, x_n) \rangle_0. \quad (11)$$

Nach LSZ hat diese Funktion folgende Eigenschaften:

A.  $r_n$  ist translationsinvariant, also nur abhängig von den Variablen

$$\xi_k = x_0 - x_k, \quad k = 1, \dots, n: \quad (12)$$

$$r_n(x_0, \dots, x_n) = r'_n(\xi_1, \dots, \xi_n). \quad (13)$$

(Wir werden im folgenden häufig  $r_n$  für  $r'_n$  und  $W_n$  für  $W'_n$  schreiben, wenn keine Gefahr von Verwechslungen besteht.)

$r'_n$  ist invariant gegen  $L^\dagger_\perp$ :

$$r'_n(\xi_1, \dots, \xi_n) = r'_n(A \xi_1, \dots, A \xi_n) \quad \text{für } A \in L^\dagger_\perp. \quad (14)$$

B.  $r'_n$  ist retardiert in allen Variablen, d. h.

$$r'_n(\xi_1, \dots, \xi_n) = 0 \quad \text{falls ein } \xi_i \notin V_+. \quad (15)$$

C.  $r'_n$  ist symmetrisch in allen Variablen, d. h.

$$r'_n(\xi_1, \dots, \xi_n) = r'_n(\xi_{i_1}, \dots, \xi_{i_n}), \quad (16)$$

wenn  $(i_1, \dots, i_n)$  eine Permutation der Indizes  $(1, \dots, n)$  ist.

Man erkennt sofort die Analogie der Bedingungen A und B zu den Eigenschaften a) und b) der Wightmanfunktion. Auch die Eigenschaften c) und C) entsprechen sich in einem gewissen Sinne.

Das in der Einleitung erwähnte Gleichungssystem  $G$  werden wir hier nicht berücksichtigen. Hingegen werden wir eine darin enthaltene schwächere Bedingung verwenden, welche auch ohne Benützung der

Asymptotenbedingung hergeleitet werden kann. Diese Bedingung soll hier nur für den Fall  $n = 3$  angegeben werden, da sie für uns nur in diesem Falle wichtig ist.

Wir gehen aus von der Operatoridentität (GLZ Gl. 11):

$$\left. \begin{aligned} R(x_0, x_1, x_2, x_3) - R(x_1, x_0, x_2, x_3) = \\ = - [R(x_1, x_2, x_3), A(x_0)] + [R(x_0, x_2, x_3), A(x_1)] - \\ - [R(x_1, x_2), R(x_0, x_3)] - [R(x_1, x_3), R(x_0, x_2)]. \end{aligned} \right\} \quad (17)$$

Für die Fouriertransformierten der Vakuum Erwartungswerte der rechts stehenden Terme lassen sich auf Grund unserer Voraussetzungen gewisse Trägeraussagen machen. Ihre Herleitung entspricht der Herleitung von Gleichung (6) (aus welcher sie übrigens auch auf direktem Wege gefolgert werden könnten) und soll hier für den ersten Term kurz skizziert werden:

$$\langle [R(x_1, x_2, x_3), A(x_0)] \rangle_0 = \langle R(\dots) A(x_0) \rangle_0 - \langle A(x_0) R(\dots) \rangle_0 \quad (18)$$

Sei  $U(a)$  der zur Translation  $x' = x + a$  gehörige unitäre Operator des Hilbertraumes. Dann gilt

$$A(x) = U(x) A(0) U(-x). \quad (19)$$

$U(a)$  besitzt die Spektralzerlegung

$$U(a) = \int e^{ip_a} dE(p).$$

Wegen der Nichtexistenz negativer Energien verschwindet die vierdimensionale Zerlegung der Einheit  $E(p)$ , falls  $p \notin \bar{V}_+$ .

Also:

$$\begin{aligned} & \int d^4 x_0 e^{-ip_0 x_0} (\Omega, R(\dots) A(x_0) \Omega) \\ &= \int d^4 x_0 e^{-ip_0 x_0} (\Omega, R(\dots) U(x_0) A(0) \Omega) \\ &= \left( \Omega, R(\dots) \int d^4 x_0 e^{-ip_0 x_0} \int e^{ip x_0} dE(p) A(0) \Omega \right) \\ &= (2\pi)^4 \left( \Omega, R(\dots) \int \delta(p - p_0) dE(p) A(0) \Omega \right) \\ &= 0, \text{ falls } p_0 \notin \bar{V}_+. \end{aligned}$$

Genau gleich zeigt man, dass die Fouriertransformierte des zweiten Terms in (18) verschwindet, falls  $p_0 \notin \bar{V}_-$ . Analoge Überlegungen lassen sich für die andern Glieder der rechten Seite von (17) anstellen.

Definiert man

$$\tilde{r}_3(p_0, \dots, p_3) = (2\pi)^{-4} \int \dots \int d^4 x_0 \dots d^4 x_3 e^{-i \sum_0^3 p_k x_k} r_3(x_0, \dots, x_3) \quad (20)$$

$$\tilde{r}'_3(p_1, p_2, p_3) = \iiint d^4 \xi_1 d^4 \xi_2 d^4 \xi_3 e^{i \sum p_k \xi_k} r'_3(\xi_1, \xi_2, \xi_3) \quad (21)$$

$$\tilde{r}_3(p_0, \dots, p_3) = \delta(p_0 + \dots + p_3) \tilde{r}'_3(p_1, p_2, p_3), \quad (22)$$

so erhält man schliesslich aus diesen Überlegungen:

$$\left. \begin{aligned} \text{D.} \quad & \tilde{r}_3(p_0, p_1, p_2, p_3) - \tilde{r}_3(p_1, p_0, p_2, p_3) = 0 \\ & \tilde{r}'_3(p_1, p_2, p_3) - \tilde{r}'_3(p_0, p_2, p_3) = 0 \end{aligned} \right\} \quad (23)$$

falls die vier Vektoren  $p_0, p_1, (p_1 + p_2), (p_1 + p_3)$  alle raumartig sind.

Dabei bedeutet

$$p_0 = -p_1 - p_2 - p_3. \quad (24)$$

Analoge Bedingungen kann man leicht auch für allgemeines  $n$  herleiten. Jetzt können wir unser Problem exakt formulieren:

Gegeben sei eine Funktion  $r_n$  mit den Eigenschaften A bis D. Existiert dann eine Funktion  $W_n$  mit den Eigenschaften a), b), c) so, dass das daraus gemäss (9) und (11) berechnete  $r_n$  das vorgegebene ist? Wenn nicht, welche zusätzlichen Bedingungen muss  $r_n$  erfüllen, damit ein solches  $W_n$  existiert?

Es ist noch zu bemerken, dass  $r_n$  durch (9) und (11) nicht eindeutig festgelegt ist, da das Produkt einer Distribution mit einer Sprungfunktion im allgemeinen nicht eindeutig definierbar ist (z. B. ist  $\Theta(x) \delta(x)$  unbestimmt). Mehrdeutigkeiten können allerdings nur auftreten in den Punkten, in denen zwei der  $x_i^0$  zusammenfallen. Wir werden uns mit dieser Schwierigkeit nicht weiter befassen.

### 3. Eindeutigkeit der Lösung

Wir werden beweisen, dass die Wightmanfunktion  $W_n$  durch die retardierte Funktion  $r_n$  im wesentlichen eindeutig bestimmt ist, falls sie überhaupt existiert. Die Eindeutigkeit besteht bis auf Terme einer speziellen Art, deren Fouriertransformierte nämlich ausser dem Faktor  $\delta(p_0 + \dots + p_n)$  noch andere  $\delta$ -artige Faktoren enthalten. Wir werden diese Unbestimmtheit am Ende dieses Paragraphen noch genauer studieren.

Da wir es mit einem linearen Problem zu tun haben, genügt es, zu zeigen, dass aus  $r_n \equiv 0$  das Verschwinden von  $W_n$  folgt (bis auf Terme der angegebenen Art). Wir führen den Beweis in zwei Schritten, indem wir erst von  $r_n$  zum mehrfachen Kommutator

$$K_n(x_0, \dots, x_n) = \langle \dots [A(x_0), A(x_1)] \dots, A(x_n) \rangle >_0 \quad (1)$$

übergehen und dann von  $K_n$  zu  $W_n$ .



$K_n$  ist nach Definition eine Summe von  $2^n W_n$ -Funktionen und soll die Eigenschaften besitzen, die sich aus dieser Tatsache gemäss den Bedingungen a) bis c) aus § 2) ergeben. Es handelt sich dabei um Trägereigenschaften im  $x$ - und im  $p$ -Raum sowie um gewisse aus der Jacobi-Identität folgende Beziehungen.

1. *Schritt*: Es ist zu zeigen, dass aus dem Verschwinden von  $r_n$  das Verschwinden von  $K_n$  folgt\*).

Wir betrachten die Funktionen

$$s_k(x_0, \dots, x_n) \equiv < [\dots [R(x_0, \dots, x_k), A(x_{k+1})] \dots, A(x_n)] >_0. \quad (2)$$

Speziell:

$$\left. \begin{aligned} s_n(x_0, \dots, x_n) &= r_n(x_0, \dots, x_n) \\ s_0(x_0, \dots, x_n) &= K_n(x_0, \dots, x_n) \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

Können wir zeigen, dass mit  $s_k$  auch  $s_{k-1}$  identisch verschwindet, so ist der gewünschte Beweis erbracht.

Aus der Definition (2.9) von  $R$  entnehmen wir:

$$\left. \begin{aligned} \theta(x_0 - x_k) \theta(x_1 - x_k) \dots \theta(x_{k-1} - x_k) s_k(x_0, \dots, x_n) &\equiv \\ \equiv \theta(x_0 - x_k) \theta(x_1 - x_k) \dots \theta(x_{k-1} - x_k) s_{k-1}(x_0, \dots, x_n) & \\ \theta(x) &\equiv \begin{cases} 1 \text{ falls } x^0 > 0 \\ 0 \text{ falls } x^0 < 0. \end{cases} \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

Ist also  $s_k \equiv 0$ , so ist

$$s_{k-1}(x_0, \dots, x_n) = 0, \text{ falls } x_k^0 < x_j^0 \text{ für alle } j < k. \quad (5)$$

Ferner folgt aus der Lokalisierungsbedingung

$$K_n(x_0, x_1, \dots, x_n) = 0 \text{ für raumartige } (x_0 - x_1) \quad (6)$$

durch mehrfache Anwendung von Jacobi-Identitäten:

$$s_{k-1}(x_0, \dots, x_n) = 0, \text{ falls } (x_k - x_i)^2 < 0 \text{ für alle } j < k. \quad (7)$$

Wir gehen wieder zu den Variablen  $\xi_i = x_0 - x_i$  über:

$$s_{k-1}(x_0, \dots, x_n) = s'_{k-1}(\xi_1, \dots, \xi_n). \quad (8)$$

Sei

$$t = \min_{j < k} (\xi_j^0), \quad T \text{ der Vektor } (-2t, 0, 0, 0).$$

\*) Der hier gegebene Beweis folgt im wesentlichen einer unveröffentlichten Arbeit von R. JOST. Für die Erlaubnis zur Benützung dieser Arbeit bin ich Herrn Prof. JOST zu Dank verpflichtet.

Unter Berücksichtigung der Retardierung von  $R$  erhält man aus (5) und (7):

$$s'_{k-1}(\xi_1, \dots, \xi_n) = 0 \quad \text{falls } (T - \xi_k) \notin \bar{V}_+. \quad (9)$$

Wir betrachten nun die Fouriertransformierte  $\sigma(\xi_1, \dots, \xi_{k-1}, p_k, \dots, p_n)$  von  $s'_{k-1}$  bezüglich der Variablen  $\xi_k, \dots, \xi_n$ . Die übrigen Variablen  $\xi_1, \dots, \xi_{k-1}$  betrachten wir als feste Parameter. Nach L. SCHWARTZ<sup>8)</sup> ist  $\sigma$  wegen (9) in  $p_k$  Randwert einer im Gebiet  $(\text{Im } p_k) \in V_-$  analytischen Funktion  $F(p_k)$ , die natürlich noch von den reellen Parametern  $\xi_1, \dots, \xi_{k-1}, p_{k+1}, \dots, p_n$  abhängt.

Andererseits ist  $s_{k-1}$  eine Summe von Termen der Form

$$< A(x_{i_1}) \dots A(x_{i_e}) R(x_0, \dots, x_{k-1}) A(x_k) A(x_{j_1}) \dots A(x_{j_m}) >_0$$

oder der daraus durch Vertauschung von  $R$  und  $A(x_k)$  hervorgehenden Form. Auf gleiche Weise wie beim Beweis von (2.23) zeigt man, dass die Fouriertransformierte bezüglich der Variablen  $x_k, \dots, x_n$  eines solchen Terms verschwindet, falls nicht  $(p_k + p_{j_1} + \dots + p_{j_m}) \in \bar{V}_+$ , resp.  $(p_k + p_{i_1} + \dots + p_{i_e}) \in \bar{V}_-$ . Die hier auftretenden  $p_{i_v}$  resp.  $p_{j_v}$  stammen aus der Reihe  $p_{k+1}, \dots, p_n$ . Ist diese Reihe fest vorgegeben, so existiert immer ein  $p_k$  so, dass alle Bedingungen der angegebenen Art in einer ganzen Umgebung dieses  $p_k$  verletzt sind, z. B.  $p_k = (0, P, 0, 0)$  mit genügend grossem  $P$ . Das heisst zu beliebig vorgegebenen  $\xi_1, \dots, \xi_{k-1}, p_{k+1}, \dots, p_n$  existiert immer eine reelle  $p_k$ -Umgebung, in der die Fouriertransformierte von  $s_{k-1}$  bezüglich  $x_k, \dots, x_n$  verschwindet, und damit auch die Funktion  $\sigma$ , die daraus durch Multiplikation mit dem Faktor  $e^{ix_0(p_k + \dots + p_n)}$  entsteht. Daraus folgt jedoch, dass die analytische Funktion  $F(p_k)$  identisch verschwindet, also

$$s'_{k-1}(\xi_1, \dots, \xi_n) = s_{k-1}(x_0, \dots, x_n) \equiv 0, \quad (10)$$

womit der gewünschte Beweis erbracht ist.

2. Schritt: Es bleibt uns noch zu zeigen, dass mit  $K_n$  auch  $W_n$  verschwindet.

Die Fouriertransformierte  $\tilde{W}_n$  der Wightmanfunktion  $W_n$  ist von der Form

$$\left. \begin{aligned} \tilde{W}_n(p_0, \dots, p_n) &= (2\pi)^{-4} \int d^{4(n+1)} x e^{-i \sum p_k x_k} W_n(x_0, \dots, x_n) \\ &= \delta(p_0 + \dots + p_n) \tilde{W}'_n(p_1 + \dots + p_n, p_2 + \dots + p_n, \dots, p_n), \end{aligned} \right\} \quad (11)$$

wobei  $\tilde{W}'_n$  definiert ist durch (2.5). Nach (2.6) gilt somit:

$$\left. \begin{aligned} \tilde{W}_n(p_0, \dots, p_n) &= 0, \text{ falls } p_0 + \dots + p_n \neq 0 \\ &\text{oder } (p_k + p_{k+1} + \dots + p_n) \notin \bar{V}_+ \text{ für ein } k \geq 1. \end{aligned} \right\} \quad (12)$$

Natürlich enthält auch  $\tilde{K}_n(p_0, \dots, p_n)$  den Faktor  $\delta(p_0 + \dots + p_n)$ . Sei nun  $\tilde{K}_n(p_0, \dots, p_n) \equiv 0$ . Wir führen die Funktionen

$$< A(x_0) \dots A(x_m) [\dots [A(x_{m+1}), A(x_{m+2})], \dots, A(x_{m+k})], A(x_{m+k+1}) \dots A(x_n) >_0$$

ein und bezeichnen ihre Fouriertransformierten durch das Symbol

$$(p_0, \dots, p_m [p_{m+1}, \dots, p_{m+k}] p_{m+k+1}, \dots, p_n).$$

Diese Ausdrücke sollen die Träger haben, die ihnen als Summe von Wightmanfunktionen nach (12) zukommen.

Speziell ist

$$\left. \begin{aligned} [p_0, \dots, p_n] &\equiv \tilde{K}_n(p_0, \dots, p_n) \equiv 0, \\ (p_0, \dots, p_n) &\equiv \tilde{W}_n(p_0, \dots, p_n). \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

Sei für ein festes  $k$  und alle  $m$

$$(p_0, \dots, p_{m-1} [p_m, \dots, p_{m+k}] p_{m+k+1}, \dots, p_n) \equiv 0. \quad (14)$$

Nach Definition gilt dann

$$\begin{aligned} &(\dots, p_{m-1} [p_m, \dots, p_{m+k-1}] p_{m+k}, \dots) \\ &- (\dots, p_{m-1}, p_{m+k} [p_m, \dots, p_{m+k-1}] p_{m+k+1}, \dots) \\ &= (\dots, p_{m-1} [p_m, \dots, p_{m+k}] p_{m+k+1}, \dots) = 0. \end{aligned}$$

Durch  $(n - k + 1)$ -maliges Anwenden dieser Beziehung erhält man

$$\left. \begin{aligned} ([p_0, \dots, p_{k-1}] p_k, \dots, p_n) &= (p_k [p_0, \dots, p_{k-1}] p_{k+1}, \dots, p_n) \\ &= \dots \\ &\vdots \\ &= (p_k, p_{k+1}, \dots, p_n [p_0, \dots, p_{k-1}]). \end{aligned} \right\} \quad (15)$$

Das erste Glied dieser Folge ist höchstens von null verschieden, falls  $(p_k + \dots + p_n) \in V_+$ . Es ist nämlich eine Summe von Wightmanfunktionen der Argumente  $p_0, \dots, p_n$ , wobei überall die Argumente  $p_k, \dots, p_n$  am Schluss stehen. Das letzte Glied in (15) ist höchstens von null verschieden, falls  $(p_0 + \dots + p_{k-1}) \in V_+$ . Beide Terme sind natürlich zugleich von null verschieden, was also nur möglich ist, wenn  $(p_0 + \dots + p_{k-1}) + (p_k + \dots + p_n) = (p_0 + \dots + p_n) \in V_+$ . Das widerspricht aber der Trägerbedingung  $p_0 + \dots + p_n = 0$ , es sei denn, die Summen  $p_0 + \dots + p_{k-1}$  und  $p_k + \dots + p_n$  seien schon einzeln gleich null. Diese Ausnahmepunkte geben Anlass zu Ternen der oben erwähnten Art, die den Faktor  $\delta(p_k + \dots + p_n)$  oder Ableitungen davon enthalten. Bis auf solche Glieder gilt also

$$(\phi_0, \dots, \phi_{m-1} [\phi_m, \dots, \phi_{m+k-1}] \phi_{m+k}, \dots, \phi_n) = 0 \text{ für alle } m,$$

d. h. (14) gilt auch für  $k-1$ .

Wegen (13) erhält man durch  $n$ -malige Anwendung dieser Betrachtung die behauptete Beziehung:

$$\tilde{W}_n(\phi_0, \dots, \phi_n) = 0$$

bis auf Terme der erwähnten speziellen Form.

Diese Ausnahmetermine haben wir nun noch genauer zu diskutieren. Dazu definieren wir

$$V_0(x_0) = W_0(x_0) = \text{const.} \quad (16)$$

$$V_n(x_0, \dots, x_n) = W_n(x_0, \dots, x_n) - \sum V_{\alpha-1}(x_{i_1} \dots x_{i_\alpha}) \dots V_{\beta-1}(x_{j_1} \dots x_{j_\beta}).$$

Die Summe  $\Sigma$  ist dabei über alle Aufteilungen der Argumente  $(x_0, \dots, x_n)$  in mindestens zwei nicht leere Mengen zu erstrecken. Innerhalb jeder der auftretenden  $V$ -Funktionen sind die Argumente in derselben Reihenfolge wie im betrachteten  $W_n$  anzuordnen. Gleichung (16) erlaubt die rekursive Berechnung aller  $V_n$  aus den  $W_k$  mit  $k \leq n$ .

Wir bilden nun

$$\left. \begin{aligned} & V_n(x_0, \dots, [x_i, x_{i+1}], \dots) \\ & \equiv V_n(x_0, \dots, x_i, x_{i+1}, \dots) - V_n(x_0, \dots, x_{i+1}, x_i, \dots) \\ & \equiv W_n(x_0, \dots, [x_i, x_{i+1}], \dots) - \sum V_\alpha(\dots [x_i, x_{i+1}], \dots) \dots V_\beta(\dots) \end{aligned} \right\} \quad (17)$$

Die Terme in  $\Sigma$ , in denen  $x_i, x_{i+1}$  in verschiedenen Faktoren auftreten, fallen heraus. Durch eine evidente Verallgemeinerung dieser Betrachtung erhält man

$$\begin{aligned} V_n([x_0, \dots, x_k], \dots, x_n) &= W_n([x_0, \dots, x_k], \dots, x_n) - \sum V_\alpha([x_0, \dots, x_k] \dots) \dots V_\beta(\dots) \\ &= W_n([x_0, \dots, x_k], \dots, x_n) - \sum_{\alpha+\beta=n-1} V_\alpha([x_0, \dots, x_k] \dots) W_\beta(\dots), \end{aligned} \quad (18)$$

wobei in der zweiten Zeile die Summe  $\Sigma$  nun über alle Aufteilungen der Argumente  $x_{k+1}, \dots, x_n$  in zwei Teilmengen läuft (wovon die im  $V$ -Faktor auftretende auch die leere Menge sein darf). Speziell:

$$V_n([x_0, \dots, x_n]) = W_n([x_0, \dots, x_n]). \quad (19)$$

Im  $\mathcal{P}$ -Raum gilt

$$\tilde{V}_n([\phi_0, \dots, \phi_k] \phi_{k+1}, \dots, \phi_n) = 0, \text{ falls } \phi_0 + \dots + \phi_k = 0, n > k \quad (20)$$

wie man mit Hilfe von (18) durch Induktion nach  $n$  leicht beweist. Sei

nämlich  $p_0 + \dots + p_k = 0$  und sei (20) für  $\tilde{V}_m$ ,  $m < n$  erfüllt. Dann wird (18) zu

$$\begin{aligned} \tilde{V}_n([p_0, \dots, p_k] \dots p_n) &= \tilde{W}_n([p_0, \dots, p_k] \dots p_n) \\ &\quad - \tilde{W}_k([p_0, \dots, p_k]) \tilde{W}_{n-k-1}(\dots p_n). \end{aligned}$$

Die rechte Seite dieser Gleichung entsteht aber aus  $\tilde{W}_n([p_0 - p_k] \dots p_n)$  durch Einschieben eines vollständigen Systems von Zwischenzuständen zwischen den Klammerausdruck und  $\tilde{A}(p_{k+1})$  und Weglassen des zum Vakuum gehörigen Terms und hat somit die behauptete Trägereigenschaft.

Gleichung (15) gilt sowohl für  $\tilde{W}_n$  als auch für  $\tilde{V}_n$ .  $\tilde{V}_n$  ist aber im Gegensatz zu  $\tilde{W}_n$  durch das dort angegebene Verfahren eindeutig bestimmbar, da es in den kritischen Punkten  $p_k + \dots + p_n = 0$  verschwindet. Also ist  $\tilde{V}_n(p_0, \dots, p_n)$  durch  $\tilde{K}_n$  eindeutig festgelegt.  $W_n$  ist aber nach (16) durch die  $V_k$  mit  $k \leq n$  ausdrückbar, also ist  $W_n$  durch die  $K_k$  mit  $k \leq n$  eindeutig bestimmt.

#### 4. Der Zusammenhang zwischen $K_3$ und $W_3$

Die Frage nach der Existenz von  $r_n$  ist im allgemeinen Fall schwieriger zu klären als die Eindeutigkeitsfrage. Wie wir schon in der Einleitung erwähnten, können für  $n = 1$  und 2 algebraische Auflösungsformeln gegeben werden, welche man jedoch nicht auf höhere  $n$  verallgemeinern kann.

Wir werden hier nur den Fall  $n = 3$  untersuchen. Das angewandte Verfahren scheint prinzipiell auf höhere  $n$  übertragbar zu sein, wird jedoch sehr unübersichtlich. Wesentlich neue Erscheinungen sind bei einer solchen Verallgemeinerung nicht zu erwarten.

Wie beim Eindeutigkeitsbeweis führen wir den mehrfachen Kommutator

$$K(x_0, \dots, x_3) = < [[[A(x_0), A(x_1)], A(x_2)], A(x_3)] >_0 \quad (1)$$

als Zwischengröße ein. (Der Index  $n = 3$  in  $r_n$ ,  $K_n$ ,  $W_n$  soll in Zukunft weggelassen werden.)

In diesem Paragraphen soll der Zusammenhang zwischen  $K$  und  $W$  untersucht werden. Wir werden zeigen, dass folgende Bedingungen für  $K$  notwendig und hinreichend für die Existenz eines  $W(x_0, \dots, x_3)$  mit den Eigenschaften a) bis c) aus § 2 sind:

α)  $K(x_0, \dots, x_3)$  ist invariant gegen die inhomogene eigentliche Lorentzgruppe.

β) Die Fouriertransformierte  $\tilde{K}$  von  $K$  hat folgende Trägereigenschaften:

$$\tilde{K}(p_0, \dots, p_3) = 0, \text{ falls } p_3^2 < 0 \quad (2)$$



$$\tilde{K}(p_0, p_1, p_2, p_3) - \tilde{K}(p_0, p_1, p_3, p_2) = 0, \text{ falls } (p_2 + p_3)^2 < 0 \quad (3)$$

$$\gamma) \quad K(x_0, x_1, x_2, x_3) = 0, \text{ falls } (x_0 - x_1)^2 < 0. \quad (4)$$

$\delta)$  Es gelten die Identitäten

$$K(x_0, x_1, x_2, x_3) + K(x_1, x_0, x_2, x_3) = 0 \quad (5)$$

$$K(x_0, x_1, x_2, x_3) + K(x_1, x_2, x_0, x_3) + K(x_2, x_0, x_1, x_3) = 0 \quad (6)$$

$$K(x_0, x_1, x_2, x_3) - K(x_0, x_1, x_3, x_2) = K(x_2, x_3, x_1, x_0) - K(x_2, x_3, x_0, x_1). \quad (7)$$

Dass diese Bedingungen notwendig sind, erkennt man sofort, wenn man  $K$  gemäss (1) als Summe von acht Wightmanfunktionen schreibt. Gleichung (3) wird hergeleitet unter Benützung der Jacobischen Identität

$$\begin{aligned} &< [[A(x_0), A(x_1)], A(x_2)], A(x_3)] >_0 \\ &- < [[A(x_0), A(x_1)], A(x_3)], A(x_2)] >_0 \\ &= < [[A(x_0), A(x_1)], [A(x_2), A(x_3)]] >_0. \end{aligned}$$

Diese Identität führt durch zweimalige Anwendung auch zu (7).

Ausser (2), (3) und (4) gibt es natürlich noch weitere Trägerbedingungen für  $\tilde{K}$  und  $K$ , doch lassen sich diese aus den hier gegebenen mit Hilfe der Identitäten (5) bis (7) herleiten.

Dass die angegebenen Bedingungen hinreichend sind, zeigen wir durch den Ausbau der beim Eindeutigkeitsbeweis angewandten Methode zu einem Konstruktionsverfahren. Wir verwenden die im § 3 eingeführte Bezeichnungsweise.

Sei  $K(x_0, \dots, x_3)$  mit den Eigenschaften  $\alpha)$  bis  $\delta)$  gegeben. Die Zahl der darin auftretenden Kommutatoren wird unter Ausnützung der postulierten  $\mathcal{P}$ -Raum-Eigenschaften sukzessive abgebaut durch die Definitionen

$$[p_0, \dots, p_3] = \tilde{K}(p_0, \dots, p_3) \quad (8)$$

$$\left. \begin{aligned} ([p_0, p_1, p_2] p_3) &= \theta(p_3) [p_0, \dots, p_3] \\ (p_3 [p_0, p_1, p_2]) &= -\theta(-p_3) [p_0, \dots, p_3] \end{aligned} \right\} \quad (9)$$

$$\left. \begin{aligned} ([p_0, p_1] p_2, p_3) &= \theta(p_2 + p_3) \{([p_0, p_1, p_2] p_3) + (p_2 [p_0, p_1, p_3])\} \\ (p_2 [p_0, p_1] p_3) &= \theta(p_2 + p_3) (p_0 [p_1, p_2, p_3]) - \\ &\quad - \theta(-p_2 - p_3) ([p_0, p_1, p_2] p_3) \\ (p_2, p_3 [p_0, p_1]) &= -\theta(-p_2 - p_3) \{([p_0, p_1, p_2] p_3) + (p_2 [p_0, p_1, p_3])\} \end{aligned} \right\} \quad (10)$$

$$\begin{aligned}
 & \tilde{W}(p_0, \dots, p_3) \\
 &= (p_0, \dots, p_3) \\
 &= \theta(p_1 + p_2 + p_3) \{ ([p_0, p_1] p_2, p_3) + (p_1 [p_0, p_2] p_3) + (p_1, p_2 [p_0, p_3]) \}.
 \end{aligned} \quad (11)$$

Die so definierten Funktionen erfüllen die Gleichungen

$$([p_0, p_1, p_2] p_3) - (p_3 [p_0, p_1, p_2]) = [p_0, \dots, p_3] \quad (12)$$

$$\begin{aligned}
 & ([p_0, p_1] p_2, p_3) - (p_2 [p_0, p_1] p_3) = ([p_0, p_1, p_2] p_3) \\
 & (p_2 [p_0, p_1] p_3) - (p_2, p_3 [p_0, p_1]) = (p_2 [p_0, p_1, p_3])
 \end{aligned} \quad (13)$$

$$(p_0, p_1, p_2, p_3) - (p_1, p_0, p_2, p_3) = ([p_0, p_1] p_2, p_3) \text{ usw.}, \quad (14)$$

d. h. das aus  $\tilde{W}$  (Gl. 11) gemäss (1) berechnete  $\tilde{K}$  ist tatsächlich das vorgegebene. Wir haben noch zu verifizieren, dass das so bestimmte  $W$  die Bedingungen a), b), c) erfüllt. Dabei beginnen wir mit Bedingung b), d. h. mit den  $p$ -Raum-Trägereigenschaften:

Wegen (2) ist

$$\begin{aligned}
 & ([p_0, p_1, p_2] p_3) = 0, \text{ falls } p_3 \notin \bar{V}_+ \\
 & (p_3 [p_0, p_1, p_2]) = 0, \text{ falls } p_3 \notin \bar{V}_-.
 \end{aligned} \quad (15)$$

Sei  $p_3 \in \bar{V}_+$ ,  $p_2 \notin \bar{V}_-$ ,  $(p_2 + p_3) \notin \bar{V}_+$ , also auch  $p_2 \notin \bar{V}_+$ ,  $(p_2 + p_3) \notin \bar{V}_-$ . Dann, mit Hilfe von (2) und (3):

$$\begin{aligned}
 & ([p_0, p_1, p_2] p_3) \\
 &= \theta(p_3) \{ [p_0, p_1, p_2, p_3] + [p_0, p_1, p_3, p_2] - [p_0, p_1, p_3, p_2] \} = 0.
 \end{aligned} \quad (16)$$

Analog:

$$(p_3 [p_0, p_1, p_2]) = 0, \text{ falls } p_2 \notin \bar{V}_+ \text{ und } (p_2 + p_3) \notin \bar{V}_-. \quad (17)$$

Aus (15) und (17) folgt:

$$([p_0, p_1] p_2, p_3) = 0 \text{ falls } p_3 \notin \bar{V}_+. \quad (18)$$

Weiter:

$$\begin{aligned}
 & ([p_0, p_1] p_2, p_3) - ([p_0, p_1] p_3, p_2) \\
 &= \theta(p_2 + p_3) \{ [p_0, p_1, p_2, p_3] - [p_0, p_1, p_3, p_2] \} \\
 &= 0, \text{ falls } (p_2 + p_3) \notin \bar{V}_+,
 \end{aligned} \quad (19)$$

nach (3). Also

$$([p_0, p_1] p_2, p_3) = 0 \text{ falls } p_3 \in \bar{V}_+, (p_2 + p_3) \notin \bar{V}_+, \quad (20)$$

da dann auch  $p_2 \notin \bar{V}_+$ . Genau gleich zeigt man:

$$(p_2, p_3 [p_0, p_1]) = 0 \text{ falls } p_2 \notin \bar{V}_- \text{ oder } (p_2 + p_3) \notin \bar{V}_-. \quad (21)$$

Ferner:

$$\left. \begin{aligned} (p_2 [p_0, p_1] p_3) &= ([p_0, p_1] p_2, p_3) - ([p_0, p_1, p_2] p_3) = 0 \text{ falls } p_3 \notin \bar{V}_+ \\ &= (p_2 [p_0, p_1, p_3]) + (p_2, p_3 [p_0, p_1]) = 0 \text{ falls } p_2 \notin \bar{V}_-. \end{aligned} \right\} \quad (22)$$

Sei  $p_3 \in \bar{V}_+$ ,  $p_2 \in \bar{V}_-$ , aber  $(p_1 + p_3) \notin \bar{V}_+$ ,  $(p_1 + p_2) \notin \bar{V}_-$ . Dann auch  $p_1^2 < 0$ ,  $p_0^2 < 0$ . Somit, unter Ausnützung von (6):

$$\begin{aligned} &(p_2 [p_0, p_1] p_3) \\ &= ([p_0, p_1] p_2, p_3) + ([p_1, p_2, p_0] p_3) + ([p_2, p_0, p_1] p_3) \\ &= 0, \text{ falls } (p_2 + p_3) \notin \bar{V}_+ \\ &= - (p_2 [p_1, p_3, p_0]) - (p_2 [p_3, p_0, p_1]) + (p_2, p_3 [p_0, p_1]) \\ &= 0, \text{ falls } (p_2 + p_3) \notin \bar{V}_-, \end{aligned}$$

d. h.

$$(p_2 [p_0, p_1] p_3) = 0, \text{ falls } (p_1 + p_3) \notin \bar{V}_+ \text{ und } (p_1 + p_2) \notin \bar{V}_-. \quad (23)$$

Sei  $p_3 \in \bar{V}_+$ ,  $(p_2 + p_3) \in \bar{V}_+$ ,  $p_0 \notin \bar{V}_-$ ,  $p_1 \notin \bar{V}_-$ , also  $(p_1 + p_2) \notin \bar{V}_+$ ,  $(p_1 + p_3) \notin \bar{V}_-$ ,  $p_1 \notin \bar{V}_+$ ,  $p_0 \notin \bar{V}_-$ . Dann:

$$\left. \begin{aligned} &([p_0, p_1] p_2, p_3) \\ &= ([p_0, p_1] p_2, p_3) - (p_2, p_3 [p_0, p_1]) \\ &= ([p_0, p_1, p_2] p_3) + (p_2 [p_0, p_1, p_3]) \\ &= [p_0, p_1, p_2, p_3] - [p_0, p_1, p_3, p_2] + ([p_0, p_1, p_3] p_2) \\ &= [p_2, p_3, p_1, p_0] - [p_2, p_3, p_0, p_1] - ([p_1, p_3, p_0] p_2) - ([p_3, p_0, p_1] p_2) \\ &= 0, \end{aligned} \right\} \quad (24)$$

wobei der Reihe nach die Gleichungen (21), (13), (9), (12), (7), (6), (2) und (16) verwendet wurden.

Also

$$([p_0, p_1] p_2, p_3) = 0, \text{ falls } p_0 \notin \bar{V}_- \text{ und } p_1 \notin \bar{V}_- \quad (25)$$

und analog

$$(p_2, p_3 [p_0, p_1]) = 0, \text{ falls } p_0 \notin \bar{V}_+ \text{ und } p_1 \notin \bar{V}_+. \quad (26)$$

Schliesslich:

$$(p_0, \dots, p_3) = 0, \text{ falls } p_3 \notin \bar{V}_+ \quad (27)$$

wegen (18) und (26);

$$\left. \begin{aligned} (p_0, \dots, p_3) &= (p_0, p_1, p_3, p_2) + (p_0, p_1[p_2, p_3]) \\ &= 0, \text{ falls } p_3 \in \bar{V}_+, (p_2 + p_3) \notin \bar{V}_+ \end{aligned} \right\} \quad (28)$$

wegen (27) ( $p_2 \notin \bar{V}_+$ !) und (21); und endlich

$$\begin{aligned} (p_0, p_1, p_2, p_3) &= (p_0[p_1, p_2]p_3) + (p_0, p_2[p_1, p_3]) + (p_0, p_2, p_3, p_1) \\ &= 0, \text{ falls } p_3 \in \bar{V}_+, (p_2 + p_3) \in \bar{V}_+, (p_1 + p_2 + p_3) \notin \bar{V}_+ \end{aligned} \quad (29)$$

wegen (22), (21) und (27) ( $p_1 \notin \bar{V}_+$ ).

(27), (28) und (29) sind aber genau die Bedingungen, die  $\tilde{W}$  nach (3.12) erfüllen muss. Unser  $\tilde{W}$  aus Gleichung (11) erfüllt somit die Bedingung b) aus § 2.

Translationsinvarianz besteht trivialerweise, da ja der Faktor  $\delta(p_0 + \dots + p_3)$  unverändert durch die ganze Konstruktion mitwandert. Wegen der eben hergeleiteten Trägereigenschaften können in den Definitionen (8), (9), (10) alle auftretenden  $\Theta$ -Funktionen durch die charakteristische Funktion des Vorkegels mit denselben Argumenten ersetzt werden. Wegen Voraussetzung  $\alpha$ ) ist also  $\tilde{W}$  (und damit  $W$ ) invariant gegen  $L_+^\dagger$ , womit auch Bedingung a) verifiziert ist.

Die in (9) und (10) auftretenden  $\Theta$ -Funktionen enthalten nur die Variablen  $p_2$  und  $p_3$ . Die  $x$ -Raum-Eigenschaft (4) pflanzt sich deshalb ungestört fort, d. h. Rücktransformation in den  $x$ -Raum ergibt

$$([x_0, x_1]x_2, x_3) = (x_2[x_0, x_1]x_3) = (x_2, x_3[x_0, x_1]) = 0 \quad (30)$$

wenn  $(x_0 - x_1)$  raumartig ist. Das ist aber Gleichung (2.7), somit ist auch Bedingung c) erfüllt.

Zum Schlusse sei noch die explizite Auflösungsformel angegeben, die sich durch Einsetzen von (9) und (10) in (11) ergibt:

$$\left. \begin{aligned} \tilde{W}(p_0, \dots, p_3) &= \theta(p_3) \theta(p_2 + p_3) \theta(p_1 + p_2 + p_3) \{ \tilde{K}(p_0, p_1, p_2, p_3) - \\ &\quad - \theta(-p_2) \tilde{K}(p_0, p_1, p_3, p_2) - \\ &\quad - \theta(p_1 + p_3) \theta(-p_1) \tilde{K}(p_0, p_2, p_3, p_1) - \\ &\quad - \theta(-p_1 - p_3) \tilde{K}(p_0, p_2, p_1, p_3) - \\ &\quad - \theta(-p_1 - p_2) \theta(p_2) \tilde{K}(p_0, p_3, p_1, p_2) + \\ &\quad + \theta(-p_1 - p_2) \theta(-p_1) \tilde{K}(p_0, p_3, p_2, p_1) \}. \end{aligned} \right\} \quad (31)$$

### 5. Die Funktion $\tilde{r}(k_1, k_2, k_3)$

Wir haben noch den Zusammenhang zwischen  $\tilde{K}(x_0, \dots, x_3)$  und  $r(x_0, \dots, x_3)$  aufzuklären. Dazu bedienen wir uns analytischer Methoden.

Wir führen die komplexen Vierervektoren

$$k_j = p_j + iq_j, \quad p_j \text{ und } q_j \text{ reell,} \quad (1)$$

ein und betrachten die durch (2.21) definierte Funktion  $\tilde{r}(k_1, k_2, k_3)$  der zwölf komplexen Variablen  $k_i^\mu$ .

Die Eigenschaften A, B, C aus § 2 ergeben folgende Bedingungen für  $\tilde{r}$ :

A'.  $\tilde{r}(k_1, k_2, k_3)$  ist invariant gegen  $L_+^\uparrow$ .

B'.  $\tilde{r}(k_1, k_2, k_3)$  ist analytisch im Gebiet<sup>1)</sup>

$$\mathfrak{R} = \{(k_1, k_2, k_3) \mid \text{alle } q_j \in V_{++}\}, \quad (2)$$

wobei  $V_+$  den Vorkegel unter Ausschluss des Randes bedeutet.

Für jedes  $B > 0$  und für alle  $Q_j, q_j \in V_+$  ist

$$e^{-Bt} \tilde{r}(p_j + i(Q_j + tq_j))$$

in  $t \geq 0$  beschränkt durch ein Polynom in  $p_j$ <sup>8)</sup>.

C'.  $\tilde{r}(k_1, k_2, k_3)$  ist invariant gegen alle Permutationen der Variablen.

Nach einem Satz von BARGMANN, HALL und WIGHTMAN<sup>9)</sup> folgt aus A' und B', dass  $\tilde{r}$  analytisch fortsetzbar ist in das Gebiet

$$\mathfrak{R}' = V(\Lambda \mathfrak{R}), \quad (3)$$

$\Lambda \in L_+(C)$

$L_+(C)$  bedeutet dabei die Gruppe der komplexen Lorentztransformationen mit der Determinante + 1.  $\tilde{r}$  ist invariant gegen  $L_+(C)$ :

$$\tilde{r}(k_1, k_2, k_3) = \tilde{r}(\Lambda k_1, \Lambda k_2, \Lambda k_3) \text{ für } \Lambda \in L_+(C). \quad (4)$$

Mit diesem Satz können wir auch Bedingung D aus § 2 in eine Eigenschaft von  $\tilde{r}$  umsetzen: Nach R. JOST<sup>2)</sup> liegt der reelle Punkt  $(p_1, p_2, p_3)$  in  $\mathfrak{R}'$ , falls

$$\left(\sum_{j=1}^3 \alpha_j p_j\right)^2 < 0 \text{ für alle } \alpha_j \geq 0, \sum \alpha_j > 0. \quad (5)$$

Sei  $p_0 = -\sum_1^3 p_i$ ,  $k_0 = -\sum_1^3 k_i$ . Es gibt reelle Umgebungen, in denen nach

(5) sowohl  $\tilde{r}(p_1, p_2, p_3)$  als auch  $\tilde{r}(p_0, p_2, p_3)$  regulär ist. In diesen Punkten gilt (2.23), woraus man durch analytische Fortsetzung<sup>10)</sup> erhält:

$$D'. \quad \tilde{r}(k_1, k_2, k_3) = \tilde{r}(k_0, k_2, k_3). \quad (6)$$

Nach C' spielt die Variable  $k_1$  keine ausgezeichnete Rolle, man kann also auch  $k_2$  oder  $k_3$  mit  $k_0$  vertauschen.

(6) und die eben erwähnten analogen Beziehungen ergeben eine Erweiterung des Regularitätsgebietes von  $\tilde{r}$ , die wir weiter unten diskutieren werden.



In den reellen Punkten  $(p_j)$ , die nicht Regularitätspunkte von  $\tilde{r}$  sind, ist  $\tilde{r}(p_1, p_2, p_3)$  Randwert der analytischen Funktion  $\tilde{r}(k_1, k_2, k_3)$  in folgendem Sinne:

Für jede Testfunktion  $q(p_1, p_2, p_3) \in S^{11}$ , d. h. für jede beliebig oft stetig differenzierbare Funktion mit genügend raschem Abfall im Unendlichen, gilt:

$$\left. \begin{aligned} & \int d^{12} p \tilde{r}(p_1, p_2, p_3) \varphi(p_1, p_2, p_3) \\ & = \lim_{\substack{q_i \in V_+ \\ q_i \rightarrow 0}} \int d^{12} p \tilde{r}(p_1 + iq_1, \dots, p_3 + iq_3) \varphi(p_1, p_2, p_3). \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

Dieser limes soll existieren für alle  $\varphi \in S$  und unabhängig von der Art und Weise sein, in der die  $k_i$  gegen  $p_i$  streben, wenn das nur innerhalb  $\Re$  geschieht. Dann ist das so definierte  $\tilde{r}(p_j)$  eine temperierte Distribution<sup>12)</sup>, wie es sein muss.

Wir wollen jetzt weitere Eigenschaften der Funktion  $\tilde{r}$  herleiten, die aus der Existenz von  $K(x_0, \dots, x_3)$  folgen und die wir beim Übergang von  $r$  zu  $K$  benötigen werden. Es handelt sich um eine Erweiterung des Regularitätsgebietes von  $\tilde{r}$  sowie um eine ziemlich undurchsichtige Identität zwischen gewissen Randwerten der Funktion  $\tilde{r}$ .

Wir definieren

$$s(x_0, \dots, x_3) = \langle [R(x_0, x_1, x_2), A(x_3)] \rangle_0. \quad (8)$$

Die Definitionsgleichung (2.9) von  $r$  wird damit zu

$$\left. \begin{aligned} & r(x_0, x_1, x_2, x_3) \\ & = \theta(x_1 - x_3) \theta(x_2 - x_3) s(x_0, x_1, x_2, x_3) + \\ & + \theta(x_2 - x_1) \theta(x_3 - x_1) s(x_0, x_2, x_3, x_1) + \\ & + \theta(x_3 - x_2) \theta(x_1 - x_2) s(x_0, x_3, x_1, x_2). \end{aligned} \right\} \quad (9)$$

$s$  hat folgende Trägereigenschaften:

$$\left. \begin{aligned} & s(x_0, \dots, x_3) = 0, \quad \text{falls} \quad (x_0 - x_1) \notin \bar{V}_+ \\ & \quad \quad \quad \text{oder} \quad (x_0 - x_2) \notin \bar{V}_+ \\ & \text{oder } (x_0 - x_3), (x_1 - x_3), (x_2 - x_3) \text{ alle raumartig.} \end{aligned} \right\} \quad (10)$$

Die ersten beiden Bedingungen ergeben sich aus den Eigenschaften von  $R$ , die dritte aus den Eigenschaften  $\gamma$ ) und  $\delta$ ) von  $K$  (Gl. (4.4) bis (4.7)), wenn man beachtet, dass

$$s(x_0, \dots, x_3) = \theta(x_0, x_1, x_2) K(x_0, x_1, x_2, x_3) + \theta(x_0, x_2, x_1) K(x_0, x_2, x_1, x_3) \quad (11)$$

Es gilt:

$$s(x_0, \dots, x_3) = r(x_0, \dots, x_3), \text{ falls } (x_3 - x_1) \notin \bar{V}_+ \text{ und } (x_3 - x_2) \notin \bar{V}_+. \quad (12)$$

Aus der Gleichung (9) erkennt man sofort die Gültigkeit dieser Beziehung im Falle  $x_3^0 < x_1^0, x_2^0$ . Für die andern Fälle hat man die Identität (4.7) zu Hilfe zu ziehen. Wegen der Symmetrie von  $s$  und  $r$  in  $x_1$  und  $x_2$  genügt es, den Fall  $x_1^0 > x_2^0$  zu untersuchen.

Für  $x_0^0 > x_1^0 > x_3^0 > x_2^0$  wird (12) zu

$$K(x_0, x_1, x_2, x_3) = K(x_0, x_1, x_3, x_2),$$

was unter unserer Voraussetzung  $(x_3 - x_2) \notin \bar{V}_+$  wegen (4.7) und (4.4) stimmt.

Im Falle  $x_0^0 > x_3^0 > x_1^0 > x_2^0$  ist zu zeigen, dass

$$K(x_0, x_3, x_1, x_2) = K(x_0, x_1, x_2, x_3),$$

oder mit (4.6) umgeformt

$$K(x_0, x_1, x_3, x_2) + K(x_1, x_3, x_0, x_2) = K(x_0, x_1, x_2, x_3).$$

Das gilt wieder auf Grund unserer Voraussetzungen wegen (4.7) und (4.4).

Für  $x_3^0 > x_0^0$  verschwinden beide Seiten von (12) gemäss (10) und (2.15).

Damit ist (12) bewiesen. Die Funktion

$$g(x_0, \dots, x_3) = s(x_0, \dots, x_3) - r(x_0, \dots, x_3) \quad (13)$$

verschwindet also ausserhalb der durch

$$G: \left. \begin{aligned} (x_0 - x_1) &\in \bar{V}_+ \\ (x_0 - x_2) &\in \bar{V}_+ \\ (x_3 - x_1) &\in \bar{V}_+ \text{ oder } (x_3 - x_2) \in \bar{V}_+ \end{aligned} \right\} \quad (14)$$

definierten Punktmenge.

Wir betrachten nun  $r, s, g$  wieder als Funktionen der Differenzvariablen  $\xi_j = x_0 - x_j$  und führen ihre Fouriertransformierten  $\tilde{r}(p_1, p_2, p_3)$  usw. ein. Aus (14) folgt in gleicher Weise wie bei  $\tilde{r}$ , dass  $\tilde{g}(p_1, p_2, p_3)$  Randwert einer analytischen Funktion  $\tilde{g}(k_1, k_2, k_3)$  ist. Deren Regularitätsgebiet ist die Röhre

$$\mathfrak{G}_{123}: q_3 \in V_-, (q_1 + q_3) \in V_+, (q_2 + q_3) \in V_+, \quad (15)$$

und  $\tilde{g}$  unterliegt darin analogen Beschränktheitsbedingungen wie den in  $B'$  für  $\tilde{r}$  gegebenen. Das gilt nämlich, falls<sup>8)</sup>

$$\sum_1^3 \xi_j q_j > 0 \quad \text{für} \quad (\xi_j) \in G, (q_j) \in \mathfrak{G}_{123}.$$

Diese Bedingung ist aber erfüllt: Sei  $(\xi_1 - \xi_3) \in \bar{V}_+$ ,  $\xi_1 \in \bar{V}_+$ ,  $\xi_2 \in \bar{V}_+$ . Dann gilt in  $\mathfrak{G}_{123}$

$$\sum \xi_j q_j = \xi_1 (q_1 + q_3) + \xi_2 q_2 - (\xi_1 - \xi_3) q_3 > 0,$$

da alle drei Glieder dieser Summe schon einzeln  $> 0$  sind. (Aus  $q_3 \in V_-$  und  $(q_2 + q_3) \in V_+$  folgt natürlich  $q_2 \in V_+$ .) Genau gleich verfährt man im Falle  $(\xi_2 - \xi_3) \in \bar{V}_+$ ,  $\xi_1 \in \bar{V}_+$ ,  $\xi_2 \in \bar{V}_+$ , der nach (14) auch auftreten kann.

Also

$$\tilde{g}(p_1, p_2, p_3) = \lim_{\substack{(q_j) \in \mathfrak{G}_{123} \\ q_j \rightarrow 0}} \tilde{g}(k_1, k_2, k_3), \quad (16)$$

wobei dieser limes im Sinne von Gleichung (7) zu verstehen ist.

In § 2 haben wir gezeigt (im Anschluss an (2.18)), dass

$$\tilde{s}(p_1, p_2, p_3) = 0 \text{ für } p_3^2 < 0. \quad (17)$$

Nach der Definition (13) von  $g$  gilt somit:

$$\tilde{g}(p_1, p_2, p_3) = -\tilde{r}(p_1, p_2, p_3) \text{ für } p_3^2 < 0. \quad (18)$$

$\tilde{g}(k_j)$  erfüllt die Voraussetzungen des bei (3) erwähnten Satzes von BARGMANN, HALL und WIGHTMAN; also lässt sich  $\tilde{g}$  in ein grösseres Gebiet  $\mathfrak{G}'_{123}$  analytisch fortsetzen, das analog zu  $\mathfrak{R}'$  definiert ist. Die reellen Punkte in  $\mathfrak{G}'_{123}$  sind analog zu (5) bestimmt durch die Forderung

$$[\alpha_1 (p_1 + p_3) + \alpha_2 (p_2 + p_3) - \alpha_3 p_3]^2 < 0 \text{ für alle } \alpha_i \geq 0, \sum \alpha_i > 0. \quad (19)$$

Speziell ist sowohl in den reellen Punkten von  $\mathfrak{R}'$  als auch in denen von  $\mathfrak{G}'_{123}$  der Vektor  $p_3$  raumartig. Nun gibt es reelle Umgebungen, die beiden diesen Gebieten angehören, z. B. eine Umgebung des Punktes

$$p_1 = p_2 = (0, 10, 0, 0), p_3 = (0, 0, 1, 0).$$

In diesen Punkten gilt (18), also ist  $\tilde{g}(k_j)$  eine analytische Fortsetzung von  $\tilde{r}(k_j)$  in das Gebiet  $\mathfrak{G}'_{123}$ :

$$\tilde{g}(k_1, k_2, k_3) = -\tilde{r}(k_1, k_2, k_3), \quad (20)$$

und  $\tilde{r}$  ist regulär in  $\mathfrak{G}'_{123}$ .

Auf Grund dieser Tatsache sowie der Symmetrien  $C'$  und  $D'$  von  $\tilde{r}$  und der aus (4) folgenden Invarianz von  $\tilde{r}$  gegen die totale Spiegelung  $k'_i = -k_i$  lässt sich nun über das Regularitätsgebiet von  $\tilde{r}$  folgendes aussagen:

Die Bedingungen  $B'$ ,  $C'$ ,  $D'$  ergeben, dass  $\tilde{r}(k_1, k_2, k_3)$  regulär ist, falls drei der vier  $q_j$  ( $q_0$  mit eingerechnet!) in  $V_+$  liegen (oder falls drei der vier  $q_j$  in  $V_-$  liegen, wegen der erwähnten Spiegelinvarianz). Es sind dann alle  $(q_j + q_k)$  zeitartig ( $j, k = 0, \dots, 3$ ). (20) bedeutet, dass  $\tilde{r}$  in  $\mathfrak{G}'_{123}$  noch analytisch ist. An Stelle von  $k_1, k_2, k_3$  kann man hier wieder eine

beliebige Auswahl der vier  $k_j$  in beliebiger Reihenfolge setzen, d. h.  $\tilde{r}$  ist regulär in allen  $\mathfrak{G}_{ikj}$ . Auch hier sind alle  $(q_j + q_k)$  zeitartig, wie man sich leicht überlegt.

Es ist  $\mathfrak{G}_{ikj} = \mathfrak{G}_{kij}$ . Aus den vier Indizes  $0, \dots, 3$  lassen sich auf vier Arten drei verschiedene auswählen. Von diesen dreien kann jeder zuhinterst stehen, so dass im ganzen zwölf Gebiete  $\mathfrak{G}_{ikj}$  existieren. Diese Zahl wird noch verdoppelt durch die Möglichkeit der totalen Spiegelung.

Sei nun ein Punkt  $(k_0, \dots, k_3)$  ( $\sum_0^3 k_j = 0$ ) gegeben, in dem alle  $(q_j + q_k)$  zeitartig sind. Dann ist dieser Punkt ein Regularitätspunkt von  $\tilde{r}$ :

Liegen drei der  $q$ , z. B.  $q_i, q_j, q_h$ , im selben Halbkegel, so haben wir es nach (2) und (4) zu tun mit einem Regularitätspunkt von  $\tilde{r}(k_i, k_j, k_h) - \tilde{r}(k_1, k_2, k_3)$ .

Seien nun zwei der  $q_i$  in  $V_+$ , die beiden andern in  $V_-$  (z. B.  $q_0, q_1 \in V_+$ ,  $q_2, q_3 \in V_-$ ). Das ist auf sechs Arten möglich. Die  $(q_j + q_k)$ ,  $j \neq k$ , können noch auf je vier Arten in den beiden Halbkegeln verteilt sein: In unserem Beispiel ist die Lage von  $(q_1 + q_2)$  und von  $(q_1 + q_3)$  noch frei, die übrigen Summen sind dadurch festgelegt. Diese  $6 \times 4 = 24$  Möglichkeiten entsprechen gerade den 24  $\mathfrak{G}$ -Gebieten. Ist z. B. in unserem Spezialfall  $(q_1 + q_2) \in V_-$ ,  $(q_1 + q_3) \in V_+$ , so sind wir in einem Regularitätspunkt von

$$\tilde{g}(k_0, k_1, k_3) = -\tilde{r}(k_0, k_1, k_3) = -\tilde{r}(k_1, k_2, k_3).$$

Wir haben also folgendes Ergebnis:

I.  $\tilde{r}(k_1, k_2, k_3)$  ist analytisch im Punkte  $k_j = p_j + iq_j$ , falls dort alle  $(q_j + q_h)^2 > 0$  ( $j, h = 0, \dots, 3$ ).

Auf jedem Strahl  $Q_j + tq_j$  ( $t \geq 0$ ), der ganz in der angegebenen Menge des  $q$ -Raumes verläuft, wird für jedes  $B > 0$  der Ausdruck

$$e^{-Bt} \tilde{r}(p_j + i(Q_j + tq_j))$$

majorisiert durch ein Polynom in den  $p_j$ .

Natürlich ist die angegebene Menge nicht das volle Regularitätsgebiet von  $\tilde{r}$ ; sie ist überhaupt kein Gebiet, da sie nicht zusammenhängend ist. Es handelt sich um eine Vereinigungsmenge von Röhren der Art von  $\mathfrak{R}$  und  $\mathfrak{G}$ . Nach dem früher zitierten Satz von BARGMANN, HALL und WIGHTMAN ist  $\tilde{r}$  also noch analytisch in der Holomorphiehülle  $\mathfrak{H}$  des aus der betrachteten Menge durch Anwendung von  $L_+(C)$  hervorgehenden Gebietes.

Wir werden in § 8 auf indirektem Wege zeigen, dass auch  $\mathfrak{H}$  noch nicht das volle Regularitätsgebiet von  $\tilde{r}$  ist.

Die eben hergeleitete Bedingung I ist, zusammen mit A' bis D', noch nicht hinreichend für die Lösbarkeit unseres Umkehrproblems, d. h. für die Existenz von  $K$ . Man kann das z. B. daran sehen, dass wir die Eigen-

schaft (14) der Funktion  $g$  nicht voll ausgenutzt haben. Aus I (d. h. aus (15) und den zugehörigen Beschränktheitsbedingungen) folgt nämlich nur, dass der Träger von  $g(\xi_1, \xi_2, \xi_3)$  in der Menge  $\xi_1 \in \bar{V}_+, \xi_2 \in \bar{V}_+, (\xi_1 + \xi_2 - \xi_3) \in \bar{V}_+$  liegt (siehe § 6). Diese Menge ist aber grösser als  $G$ .

Wir wollen deshalb noch eine weitere Bedingung für  $\tilde{r}$  ableiten, die dann zusammen mit den schon gegebenen die Existenz von  $K$  sicherstellt.

Dazu beweisen wir zuerst die Identität

$$\theta(x_2 - x_3) [g(x_0, x_1, x_2, x_3) - g(-x_1, -x_0, -x_3, -x_2)] = 0. \quad (21)$$

Wegen (14) gilt das, wenn  $x_0^0 < x_1^0$ , oder  $(x_3 - x_1) \notin \bar{V}_+$ , oder  $(x_0 - x_2) \notin \bar{V}_+$ . Dann verschwinden nämlich beide Summanden einzeln. Es bleibt also nur der Fall

$$x_0^0 > x_2^0 > x_3^0 > x_1^0$$

zu untersuchen. Berücksichtigt man die Definition (13) von  $g$  und die aus dem unter unseren Voraussetzungen geltenden CTP-Theorem<sup>2)</sup> folgende Beziehung

$$K(x_0, x_1, x_2, x_3) = -K(-x_0, -x_1, -x_2, -x_3), \quad (22)$$

so wird (21) in diesem Fall:

$$K(x_0, x_2, x_1, x_3) - K(x_0, x_2, x_3, x_1) + K(x_1, x_3, x_0, x_2) - K(x_1, x_3, x_2, x_0) = 0.$$

Das ist aber Gleichung (4.7), deren Gültigkeit wir hier voraussetzen. Damit ist (21) bewiesen.

Wir behaupten nun, dass folgende Identität gelte:

$$\left. \begin{aligned} &g(x_0, x_1, x_3, x_2) + g(x_2, x_3, x_1, x_0) - \\ &- g(-x_1, -x_0, -x_2, -x_3) - g(-x_3, -x_2, -x_0, -x_1) = 0. \end{aligned} \right\} \quad (23)$$

Wegen (21) und (14) ist das erfüllt, falls  $x_3^0 > x_2^0$  oder  $x_1^0 > x_0^0$ , wie man durch Multiplikation mit den entsprechenden  $\theta$ -Faktoren erkennt. Durch Anwendung der Symmetrie

$$g(x_0, x_1, x_2, x_3) = g(x_0, x_2, x_1, x_3) \quad (24)$$

sieht man in gleicher Weise, dass (23) auch gilt, falls  $x_3^0 > x_0^0$  oder  $x_1^0 > x_2^0$ . Zu diskutieren bleibt der Fall  $x_1^0, x_3^0 < x_0^0, x_2^0$ . Wegen der Invarianz der zu beweisenden Gleichung gegen die Vertauschungen  $x_1 \leftrightarrow x_3$  und  $x_0 \leftrightarrow x_2$  (wieder als Folge von (24)) genügt es, den Fall

$$x_1^0 < x_3^0 < x_0^0 < x_2^0$$

zu betrachten. Die linke Seite von (23) wird dann nach (13) und (22):



$$L = K(x_0, x_3, x_1, x_2) + K(x_2, x_3, x_1, x_0) - K(x_2, x_0, x_3, x_1) + \\ + K(x_1, x_0, x_2, x_3) - K(x_1, x_3, x_0, x_2) + K(x_3, x_0, x_1, x_2),$$

was mit (4.5) bis (4.7) umgeformt werden kann:

$$L = K(x_0, x_1, x_3, x_2) + K(x_3, x_2, x_0, x_1) + K(x_2, x_3, x_1, x_0) + K(x_1, x_0, x_2, x_3) = 0,$$

womit (23) bewiesen ist.

Durch Fouriertransformation erhält man aus (23):

$$\tilde{g}(\hat{p}_1, \hat{p}_3, \hat{p}_2) + \tilde{g}(\hat{p}_3, \hat{p}_1, \hat{p}_0) - \tilde{g}(-\hat{p}_0, -\hat{p}_2, -\hat{p}_3) - \tilde{g}(-\hat{p}_2, -\hat{p}_0, -\hat{p}_1) = 0. \quad (25)$$

Diese Gleichung kann nach (16) und (20) als Beziehung zwischen Randwerten der Funktion  $\tilde{r}(k_j)$  geschrieben werden und ergibt so die gewünschte zusätzliche Bedingung für diese Funktion:

II. *Es gilt die Identität*

$$\lim_{\substack{(qj) \in \mathfrak{G}_{132} \\ qj \rightarrow 0}} \tilde{r}(k_1, k_2, k_3) + \lim_{\substack{(qj) \in \mathfrak{G}_{310} \\ qj \rightarrow 0}} \tilde{r}(k_1, k_2, k_3) = \\ = \lim_{\substack{(-qj) \in \mathfrak{G}_{023} \\ qj \rightarrow 0}} \tilde{r}(k_1, k_2, k_3) + \lim_{\substack{(-qj) \in \mathfrak{G}_{201} \\ qj \rightarrow 0}} \tilde{r}(k_1, k_2, k_3). \quad (26)$$

Diese Forderung scheint sich nicht in einfacher Weise als funktionentheoretische Eigenschaft von  $\tilde{r}(k_j)$  ausdrücken zu lassen, wodurch sie sich sehr unvorteilhaft von den andern Forderungen A' bis D' und I abhebt.

Es ist noch zu bemerken, dass für spezielle Werte der Variablen  $\hat{p}_j$  die Identität (26) eine Folge der Bedingung I ist. Die lim-Vorschriften  $(q_j) \in \mathfrak{G}_{132}$  und  $(-q_j) \in \mathfrak{G}_{023}$  unterscheiden sich nur durch das Vorzeichen von  $(q_2 + q_3)$ , ebenso die beiden andern lim-Vorschriften, die in (26) auftreten. Daraus folgt, dass die vier Terme der Identität paarweise gleich sind, falls  $(\hat{p}_2 + \hat{p}_3)$  raumartig ist. (Siehe den Beweis von Gleichung (6.11) im folgenden Paragraphen.) Eine solche Gleichheit je zweier Terme besteht auch, falls  $(\hat{p}_1 + \hat{p}_2)$  raumartig ist. In diesen beiden Fällen ist also (26) von selbst erfüllt.

## 6. Die Existenz von $K(x_0, \dots, x_3)$

Es soll gezeigt werden, dass die in § 5 für  $\tilde{r}(k_1, k_2, k_3)$  hergeleiteten Bedingungen I und II, zusammen mit den bereits bekannten A' bis D', für die Existenz der Wightmanfunktion hinreichend sind.

D. h. es gilt folgender Satz:

*Es sei eine analytische Funktion  $\tilde{r}(k_1, k_2, k_3)$  mit den Eigenschaften A' bis D', I und II aus § 5 gegeben.*

Dann existiert eine Funktion  $K(x_0, \dots, x_3)$  mit den Eigenschaften  $\alpha)$  bis  $\delta)$  aus § 1 so, dass die daraus nach (2.9) und (2.21) berechnete Funktion  $\tilde{r}(k_1, k_2, k_3)$  die vorgegebene ist.

Die in II auftretenden Randwerte von  $\tilde{r}$ , ebenso wie die im folgenden eingeführten anderen Randwerte, sollen existieren im Sinne der Gleichung (5.7).

Wir beweisen diesen Satz, indem wir  $K$  aus  $\tilde{r}$  explizit konstruieren. Nach § 3 ist  $K$  eindeutig festgelegt. Das im folgenden konstruierte  $K$  ist also das einzig mögliche.

Zuerst definieren wir die Funktionen reeller Variablen

$$\begin{aligned}\tilde{r}(p_1, p_2, p_3) &= \lim_{\substack{(qi) \in \mathfrak{R} \\ qi \rightarrow 0}} \tilde{r}(k_1, k_2, k_3) \\ g(p_1, p_2, p_3) &= - \lim_{\substack{(qi) \in \mathfrak{G}_{123} \\ qi \rightarrow 0}} \tilde{r}(k_1, k_2, k_3) \\ k_j &= p_j + iq_j\end{aligned}\quad (1)$$

Die Gebiete  $\mathfrak{R}$  und  $\mathfrak{G}_{123}$  sind dabei definiert durch (5.2) resp. (5.15). Wegen Voraussetzung I ist  $\tilde{r}$  in  $\mathfrak{R}$  und in  $\mathfrak{G}_{123}$  analytisch, so dass die Definition (1) sinnvoll ist (unter der erwähnten zusätzlichen Voraussetzung über die Existenz der Randwerte von  $\tilde{r}$ ).

Wegen  $C'$  und der Symmetrien von  $\mathfrak{R}$  und  $\mathfrak{G}_{123}$  gilt

$$\tilde{r}(p_{i_1}, p_{i_2}, p_{i_3}) = \tilde{r}(p_1, p_2, p_3) \quad (2)$$

für jede Permutation  $(i_1, i_2, i_3)$  der Indizes  $(1, 2, 3)$ , und

$$\tilde{g}(p_1, p_2, p_3) = \tilde{g}(p_2, p_1, p_3). \quad (3)$$

Sowohl  $\mathfrak{R}$  als auch  $\mathfrak{G}_{123}$  sind konvex.  $\tilde{r}(k_j)$  ist deshalb in  $\mathfrak{R}$ , resp.  $\mathfrak{G}_{123}$  Fouriertransformierte einer Distribution  $r(\xi_1, \xi_2, \xi_3)$ , resp.  $g(\xi_1, \xi_2, \xi_3)$ . Nach L. SCHWARTZ<sup>8)</sup> liegt der Träger von  $r$  im Halbraum

$$\sum_{i=1}^3 \xi_i q_i \geq 0,$$

falls für alle  $B > 0$  und alle  $(Q_j) \in \mathfrak{R}$  der Ausdruck

$$e^{-Bt} \tilde{r}(p_j + i(Q_j + tq_j))$$

in  $t \geq 0$  durch ein Polynom in  $p_j$  beschränkt ist. Nach Voraussetzung I ist dies der Fall für alle  $q_i \in V_+$ , d. h. der Träger von  $r$  liegt im Durchschnitt aller Halbräume der angegebenen Art mit  $q_i \in V_+$ , also

$$r(\xi_1, \xi_2, \xi_3) = 0, \text{ falls ein } \xi_i \notin \bar{V}_+. \quad (4)$$

Ebenso liegt der Träger von  $g$  im Durchschnitt der entsprechenden Halbräume mit  $(q_i) \in \mathfrak{G}_{123}$ . Aber

$$\sum \xi_i q_i = \xi_1 (q_1 + q_3) + \xi_2 (q_2 + q_3) - (\xi_1 + \xi_2 - \xi_3) q_3,$$

also

$$g(\xi_1, \xi_2, \xi_3) = 0, \text{ falls } \xi_1 \notin \bar{V}_+, \text{ oder } \xi_2 \notin \bar{V}_+, \text{ oder } (\xi_1 + \xi_2 - \xi_3) \notin \bar{V}_+. \quad (5)$$

Wegen der Existenz der Randwerte in (1) sind  $r$  und  $g$  temperierte Distributionen, und  $\tilde{r}(p_i)$ ,  $\tilde{g}(p_i)$  sind ihre Fouriertransformierten im Sinne der Distributionentheorie.

Die Voraussetzung II gestattet eine Verschärfung der Trägereigenschaft (5): (5.26) kann nach (1) in der Form (5.25) geschrieben werden. Daraus erhält man durch Fouriertransformation:

$$g(\xi_1, \xi_2, \xi_3) - g(\xi_2 - \xi_3, \xi_1 - \xi_3, -\xi_3) + g(\xi_1, \xi_1 - \xi_3, \xi_1 - \xi_2) + g(\xi_2 - \xi_3, \xi_2, \xi_2 - \xi_1).$$

Ist weder  $(\xi_1 - \xi_3) \in \bar{V}_+$  noch  $(\xi_2 - \xi_3) \in \bar{V}_+$ , so verschwinden alle rechtsstehenden Glieder wegen (5). Der Träger von  $g$  liegt also in  $G$  (siehe (5.14)):

$$\xi_1 \in \bar{V}_+, \xi_2 \in \bar{V}_+, (\xi_1 - \xi_3) \in \bar{V}_+ \text{ oder } (\xi_2 - \xi_3) \in \bar{V}_+. \quad (6)$$

Aus der Invarianz von  $\tilde{r}(k_j)$  und der Gebiete  $\mathfrak{R}$  und  $\mathfrak{G}_{123}$  gegen  $L_+^\dagger$  ergibt sich die Invarianz von  $r(\xi_i)$  und  $g(\xi_i)$  gegen  $L_+^\dagger$ .

Aus  $r(\xi_i)$ , resp.  $g(\xi_i)$  erhält man die entsprechenden Funktionen der vier Variablen  $x_i$  durch die Definition

$$\left. \begin{aligned} r(x_0, x_1, x_2, x_3) &= r(x_0 - x_1, x_0 - x_2, x_0 - x_3) \\ g(x_0, x_1, x_2, x_3) &= g(x_0 - x_1, x_0 - x_2, x_0 - x_3) \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

Weiter definieren wir

$$\text{also} \quad \left. \begin{aligned} s(x_0, \dots, x_3) &= r(x_0, \dots, x_3) + g(x_0, \dots, x_3) \\ s(\xi_1, \xi_2, \xi_3) &= r(\xi_1, \xi_2, \xi_3) + g(\xi_1, \xi_2, \xi_3) \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

$s$  ist retardiert in  $\xi_1$  und  $\xi_2$  und erfüllt die Gleichung (5.9):

$$\left. \begin{aligned} r(x_0, \dots, x_3) &= \theta(x_1 - x_3) \theta(x_2 - x_3) s(x_0, x_1, x_2, x_3) + \\ &+ \theta(x_2 - x_1) \theta(x_3 - x_1) s(x_0, x_2, x_3, x_1) + \\ &+ \theta(x_3 - x_2) \theta(x_1 - x_2) s(x_0, x_3, x_1, x_2), \end{aligned} \right\} \quad (9)$$

wie man durch Einsetzen erkennt (unter Benützung der (2) und (3) entsprechenden Symmetrien von  $r$  und  $g$ ).

Im  $p$ -Raum wird (8) zu

$$\left. \begin{aligned} \tilde{s}(p_1, p_2, p_3) &= \tilde{r}(p_1, p_2, p_3) + \tilde{g}(p_1, p_2, p_3) \\ \lim_{\substack{(q_i) \in \mathfrak{R} \\ q_i \rightarrow 0}} \tilde{r}(k_1, k_2, k_3) &= \lim_{\substack{(q_i) \in \mathfrak{G}_{123} \\ q_i \rightarrow 0}} \tilde{r}(k_1, k_2, k_3). \end{aligned} \right\} \quad (10)$$

Die beiden limes-Vorschriften in dieser Gleichung unterscheiden sich nur durch das Vorzeichen von  $q_3$ . Es ist nämlich  $q_3 \in V_+$  in  $\mathfrak{R}$ ,  $q_3 \in V_-$  in  $\mathfrak{G}_{123}$ , aber in beiden Gebieten  $q_1, q_2 \in V_+$  und  $(q_1 + q_3) \in V_+$ ,  $(q_2 + q_3) \in V_+$ .

Falls  $p_3$  raumartig ist, ist der Punkt  $(k_j)$  mit  $q_1 \in V_+$ ,  $q_2 \in V_+$ ,  $q_3 = 0$  ein Regularitätspunkt von  $\tilde{r}(k_j)$ . Es kann dann nämlich eine infinitesimale Lorentztransformation  $\Lambda \in L_+(C)$  angegeben werden, so dass  $(\Lambda k_1, \Lambda k_2, \Lambda k_3) \in \mathfrak{R}$ , d. h. unser Punkt liegt in  $\mathfrak{R}'$ :

Ohne Einschränkung der Allgemeinheit kann man annehmen

$$p_3 = (0, a, 0, 0), \quad a > 0.$$

Durch die infinitesimale Transformation

$$\Lambda = 1 + i \varepsilon \begin{pmatrix} 0 & 1 & | & 0 \\ 1 & 0 & | & 0 \\ 0 & 0 & | & 0 \end{pmatrix}, \quad \varepsilon > 0$$

wird dieses  $p_3$  übergeführt in  $k'_3 = \Lambda p_3 = p_3 + i\varepsilon(a, 0, 0, 0)$ , also ist  $q'_3 \in V_+$ . Für  $j = 1, 2$  ist mit  $q_j$  auch  $q'_j \in V_+$ , wenn nur  $\varepsilon$  genügend klein gewählt wird.

Da die Reihenfolge des Verschwindens der  $q_j$  in der Definition (1) keine Rolle spielen soll, können wir in (10) zuerst mit  $q_3$  gegen null gehen. Ist  $p_3$  raumartig, so gelangen wir dabei nach der vorhergehenden Bemerkung in einen Regularitätspunkt von  $\tilde{r}$ , das Vorzeichen von  $q_3$  ist also in diesem Falle ohne Bedeutung. Beide Terme der rechten Gleichungsseite sind gleich, d. h.

$$\tilde{s}(p_1, p_2, p_3) = 0 \text{ wenn } p_3^2 < 0. \quad (11)$$

Wegen (2) und (3) gilt

$$s(\xi_1, \xi_2, \xi_3) = s(\xi_2, \xi_1, \xi_3), \quad (12)$$

wegen der Lorentzinvarianz von  $r$  und  $g$  ist auch  $s$  invariant gegen  $L_+^\uparrow$ .

Wir haben nun noch die Gleichung (5.11) zu lösen, die zusammen mit (9) zu der Definition (2.9, 11) der Funktion  $r$  äquivalent ist. Die Lösung kann auf algebraischem Wege gefunden werden, unter Ausnützung der Bedingungen (4.5) und (4.6) und der Beziehung (5.22). Es ergibt sich:

$$\left. \begin{aligned} K(x_0, \dots, x_3) &= s(x_0, x_1, x_2, x_3) - s(x_1, x_0, x_2, x_3) - \\ &- s(-x_0, -x_1, -x_2, -x_3) + s(-x_1, -x_0, -x_2, -x_3). \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

Dieser Ausdruck ist sicher lorentzinvariant, da  $s$  lorentzinvariant ist. Wegen der Retardierung von  $s$  in  $(x_0 - x_1)$  erfüllt  $K$  die Lokalisierungsbedingung (4.4). Die Antisymmetrie (4.5) ist offensichtlich auch vorhanden, ebenso gilt die Jacobi-Identität (4.6). Zu prüfen sind also noch die Bedingung  $\beta$ ) und die Identität (4.7) aus Bedingung  $\delta$ ) in § 4.

Durch Einsetzen von (8) in (13) erhält man unter Berücksichtigung der Symmetrien von  $r$  und  $g$ :

$$\left. \begin{aligned} & K(x_0, x_1, x_2, x_3) - K(x_0, x_1, x_3, x_2) \\ &= g(x_0, x_1, x_2, x_3) - g(x_1, x_0, x_2, x_3) - g(-x_0, -x_1, -x_2, -x_3) + \\ &+ g(-x_1, -x_0, -x_2, -x_3) - \\ &- g(x_0, x_1, x_3, x_2) + g(x_1, x_0, x_3, x_2) + g(-x_0, -x_1, -x_3, -x_2) - \\ &- g(-x_1, -x_0, -x_3, -x_2). \end{aligned} \right\} \quad (14)$$

Einen analogen Ausdruck erhält man für

$$K(x_2, x_3, x_1, x_0) - K(x_2, x_3, x_0, x_1).$$

Wegen der Identität (5.23) sind diese beiden Ausdrücke gleich. ((5.23) gilt als Folge der Voraussetzung (5.26)). Damit ist auch die Forderung (4.7) erfüllt.

Die Fouriertransformierte von  $K(x_0, \dots, x_3)$  ist

$$\left. \begin{aligned} & \tilde{K}(p_0, \dots, p_3) \\ &= \delta(p_0 + \dots + p_3) [\tilde{s}(p_1, p_2, p_3) - \tilde{s}(p_0, p_2, p_3) - s(-p_1, -p_2, -p_3) \\ &+ \tilde{s}(-p_0, -p_2, -p_3)] = 0, \text{ wenn } p_3^2 < 0, \end{aligned} \right\} \quad (15)$$

als Folge von (11). Sei

$$G(x_0, x_1, x_2, x_3) = g(-x_1, -x_0, -x_2, -x_3) - g(x_0, x_1, x_3, x_2). \quad (16)$$

Damit wird (14) zu

$$\left. \begin{aligned} & K(x_0, x_1, x_2, x_3) - K(x_0, x_1, x_3, x_2) \\ &= G(x_0, x_1, x_2, x_3) - G(x_1, x_0, x_2, x_3) - G(x_0, x_1, x_3, x_2) + G(x_1, x_0, x_3, x_2) \end{aligned} \right\} \quad (17)$$

Aber:

$$\begin{aligned} \tilde{G}(p_0, p_1, p_2, p_3) &= \delta(p_0 + \dots + p_3) \tilde{G}'(p_1, p_2, p_3), \\ \tilde{G}'(p_1, p_2, p_3) &= -\tilde{g}(p_1, p_3, p_2) + \tilde{g}(-p_0, -p_2, -p_3) \\ &= \lim_{\substack{(qj) \in \mathfrak{G}_{132} \\ qj \rightarrow 0}} \tilde{r}(k_1, k_2, k_3) - \lim_{\substack{(-qj) \in \mathfrak{G}_{023} \\ qj \rightarrow 0}} \tilde{r}(k_1, k_2, k_3) \end{aligned}$$



Die beiden hier auftretenden limes-Vorschriften unterscheiden sich nur durch das Vorzeichen von  $(q_2 + q_3)$ , alle andern  $(q_j + q_h)$  – natürlich mit Ausnahme von  $(q_0 + q_1)$  – liegen beidemal im selben Halbkugel. Auf gleiche Weise wie Gleichung (11) erhält man daraus:

$$\tilde{G}(p_0, \dots, p_3) = 0 \quad \text{wenn } (p_2 + p_3)^2 < 0. \quad (18)$$

Also:

$$\tilde{K}(p_0, p_1, p_2, p_3) - \tilde{K}(p_0, p_1, p_3, p_2) = 0 \quad \text{wenn } (p_2 + p_3)^2 < 0. \quad (19)$$

(15) und (19) sind aber identisch mit den Gleichungen (4.2) und (4.3), also ist auch Bedingung  $\beta$ ) erfüllt.

Damit ist der am Anfang dieses Paragraphen gegebene Satz bewiesen. In § 4 wurde gezeigt, dass aus  $\alpha$ ) bis  $\delta$ ) die Existenz der Wightmanfunktion folgt, so dass wir folgendes Ergebnis haben:

*Falls  $\tilde{r}(p_1, p_2, p_3)$  Randwert einer analytischen Funktion  $\tilde{r}(k_1, k_2, k_3)$  mit den Eigenschaften A' bis D', I und II ist, so existiert die zugehörige Wightmanfunktion  $W(x_0, \dots, x_3)$  mit den Eigenschaften a), b), c) aus § 2.*

## 7. Das T-Produkt

Wir wollen kurz noch eine weitere Funktion betrachten, die mit den Funktionen  $W$  und  $r$  in engem Zusammenhange steht, nämlich die Funktion

$$\tau(x_0, \dots, x_3) \equiv \langle TA(x_0) \dots A(x_3) \rangle_0 \equiv \langle T(x_0, \dots, x_3) \rangle_0. \quad (1)$$

$T(x_0, \dots, x_3)$  bedeutet dabei das zeitlich geordnete Produkt der Feldoperatoren  $A(x_0), \dots, A(x_3)$ .

Es ist wohlbekannt, dass diese Funktion eine enge Verwandtschaft mit der Wightmanfunktion  $W(x_0, \dots, x_3)$  aufweist:

Gleich wie  $\tilde{r}(p_1, p_2, p_3)$  ist auch  $W'(\eta_1, \eta_2, \eta_3)$  (siehe (2.3)) Randwert einer analytischen Funktion  $W'(\zeta_1, \zeta_2, \zeta_3)$ ,  $\zeta_k = \eta_k + i\varrho_k^{-1}$ .  $W'$  ist regulär in  $\Re$ , d. h. falls alle  $\varrho_k \in V_+$ . Die lokalen Vertauschungsrelationen (2.8) bewirken – ähnlich wie die Symmetrien (5.6) und (5.20) im Falle von  $\tilde{r}$  – eine Vergrößerung des Regularitätsgebietes von  $W'$ . Wir definieren

$$W(z_0, \dots, z_3) = W'(z_1 - z_0, z_2 - z_1, z_3 - z_2), \quad z_k = x_k + iy_k. \quad (2)$$

$W$  ist analytisch im Punkte  $(z_0, \dots, z_3)$ , falls eine Permutation  $(z_{i_0}, \dots, z_{i_3})$  der Variablen  $(z_0, \dots, z_3)$  existiert, so dass  $(y_{i_{k+1}} - y_{i_k}) \in V_+$  für alle  $k$ .

Gehen die  $y_{i_k}$  unter Innehaltung dieser Bedingung gegen null, so strebt  $W(z_0, \dots, z_3)$  gegen  $W(x_{i_0}, \dots, x_{i_3})$ .

Wählt man

$$y_k = -\varepsilon x_k^0(1, 0, 0, 0), \quad \varepsilon > 0, \quad (3)$$

so sieht man auf Grund dieser Betrachtung, dass

$$\lim_{\varepsilon \rightarrow 0} W(z_0, \dots, z_3) = \tau(x_0, \dots, x_3). \quad (4)$$

Dieses Ergebnis kann man in eine elegantere Form bringen, das so spezielle Vorschriften für den Grenzübergang wie (3) vermeidet. Nach HALL und WIGHTMAN<sup>9)</sup> kann  $W(z_0, \dots, z_3)$  als Funktion der sechs Variablen

$$u_{ik} = (z_i - z_k)^2, i > k \quad (5)$$

geschrieben werden. Das Regularitätsgebiet von  $W(u_{ik})$  weist längs den positiv reellen Achsen aller  $u_{ik}$ -Ebenen Schnitte auf. Die Randwerte von  $W$  in den reellen Punkten hängen also im allgemeinen davon ab, ob die  $u_{ik}$  aus der oberen oder aus der unteren Halbebene gegen die reelle Achse streben. Aus der Vorschrift (3) ergibt sich:

$$v_{ik} = \text{Im } u_{ik} = 2(x_i - x_k)(y_i - y_k) = 2\varepsilon(x_i^0 - x_k^0)^2 > 0,$$

so dass (4) wird:

$$\tau(x_0, \dots, x_3) = \lim_{v_{ik} \downarrow 0} W(u_{ik}). \quad (6)$$

Der Grenzübergang muss selbstverständlich innerhalb des Regularitätsgebietes von  $W$  erfolgen.

Die Ergebnisse von § 5 erlauben es nun, eine ähnliche Beziehung zwischen  $\tilde{\tau}(p_0, \dots, p_3)$  und der Funktion  $\hat{r}(k_1, k_2, k_3)$  herzustellen.

Die Identität<sup>13)</sup>

$$R(x_0, \dots, x_n) = \sum (-1)^k \bar{T}(x_1, \dots, x_k) T(x_0, x_{k+1}, \dots, x_n), \quad (7)$$

$\bar{T}$  = antichronologischer Operator,

$\Sigma$ erstreckt über alle Aufteilungen der Variablen  $x_1, \dots, x_n$  in zwei Gruppen  $(x_1, \dots, x_k), (x_{k+1}, \dots, x_n)$ .

wird im Spezialfall  $n = 3$  zu

$$\left. \begin{aligned} & R(x_0, \dots, x_3) \\ &= T(x_0, \dots, x_3) - A(x_1) T(x_0, x_2, x_3) - A(x_2) T(x_0, x_1, x_3) - \\ & \quad A(x_3) T(x_0, x_1, x_2) + \\ &+ \bar{T}(x_1, x_2) T(x_0, x_3) + \bar{T}(x_1, x_3) T(x_0, x_2) + \bar{T}(x_2, x_3) T(x_0, x_1) - \\ &- T(x_1, x_2, x_3) A(x_0). \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

Eine ähnliche Überlegung wie wir sie beim Beweis von (2.23) angewandt haben ergibt daraus:

$$\tilde{r}(p_0, \dots, p_3) = \tilde{\tau}(p_0, \dots, p_3), \text{ falls } p_i \notin \bar{V}_-, p_0 \notin \bar{V}_+, (p_0 + p_i) \notin \bar{V}_+ \\ (i = 1, 2, 3) \quad (9)$$

Speziell:

$$\tilde{r}(p_0, \dots, p_3) = \tilde{\tau}(p_0, \dots, p_3) \text{ wenn alle } p_i^0 > 0, i = 1, 2, 3. \quad (10)$$

Wegen der totalen Symmetrie von  $\tau$  in allen Argumenten gilt allgemeiner

$$\tilde{\tau}(p_0, \dots, p_3) = \tilde{r}(p_{i_0}, \dots, p_{i_3}) \text{ wenn } p_{i_1}^0, p_{i_2}^0, p_{i_3}^0 > 0. \quad (11)$$

Weiterhin folgt aus dem CTP-Theorem<sup>2)</sup>

$$\left. \begin{aligned} \tau(x_0, \dots, x_3) &= \tau(-x_0, \dots, -x_3) \\ \tilde{\tau}(p_0, \dots, p_3) &= \tilde{\tau}(-p_0, \dots, -p_3) \end{aligned} \right\} \quad (12)$$

also

$$\tilde{\tau}(p_0, \dots, p_3) = \tilde{r}(-p_{i_0}, \dots, -p_{i_3}) \text{ wenn } p_{i_1}^0, p_{i_2}^0, p_{i_3}^0 < 0. \quad (13)$$

Mit Hilfe der ebenfalls aus (7) folgenden Identität

$$\left. \begin{aligned} T(x_0, x_1, x_2) \\ = R(x_0, x_1, x_2) + A(x_1) T(x_0, x_2) + A(x_2) T(x_0, x_1) - \bar{T}(x_1, x_2) A(x_0) \end{aligned} \right\} \quad (14)$$

lässt sich das in (8) auftretende Glied  $A(x_3)T(x_0, x_1, x_2)$  umformen:

$$A(x_3) T(x_0, x_1, x_2) = A(x_3) R(x_0, x_1, x_2) + \dots$$

Mit

$$S(x_0, \dots, x_3) = [R(x_0, x_1, x_2), A(x_3)] \quad (15)$$

wird das

$$A(x_3) T(x_0, x_1, x_2) = -S(x_0, \dots, x_3) + R(x_0, x_1, x_2) A(x_3) + \dots$$

Setzt man das in Gleichung (8) ein, so erhält man auf gleiche Weise wie (10):

$$\tilde{\tau}(p_0, \dots, p_3) = -\tilde{g}(p_0, \dots, p_3) \text{ wenn } p_3^0 < 0, p_1^0 + p_3^0 > 0, p_2^0 + p_3^0 > 0, \quad (16)$$

wobei  $g$  durch (5.13) definiert ist.

Auch diese Beziehung lässt sich auf Grund der vorhandenen Symmetrien verallgemeinern zu

$$\left. \begin{aligned}
 \tilde{\tau}(p_0, \dots, p_3) &= -\tilde{g}(p_{i_0}, \dots, p_{i_3}) \\
 &\quad \left. \begin{aligned}
 &\text{wenn } p_{i_3}^0 < 0, p_{i_1}^0 + p_{i_2}^0 > 0, p_{i_2}^0 + p_{i_3}^0 > 0 \\
 &= -\tilde{g}(-p_{i_0}, \dots, -p_{i_3}) \\
 &\text{wenn } p_{i_3}^0 > 0, p_{i_1}^0 + p_{i_2}^0 < 0, p_{i_2}^0 + p_{i_3}^0 < 0.
 \end{aligned} \right\} \quad (17)
 \end{aligned} \right\}$$

Die in (11), (13) und (17) auftretenden Vorzeichenkombinationen erschöpfen alle Möglichkeiten. Der Beweis entspricht genau den in § 5 im letzten Abschnitt vor der Formulierung der Bedingung I gegebenen Betrachtungen, wobei man nur die Halbkugel  $V_+$  resp.  $V_-$  durch die Halbräume  $p^0 > 0$  resp.  $p^0 < 0$  zu ersetzen hat.

Nach § 5 sind  $\tilde{\tau}$  und  $\tilde{g}$  nach Abspaltung des Faktors  $\delta(p_0 + \dots + p_3)$  Randwerte der analytischen Funktion  $\tilde{r}(k_i)$ . Seien die Vektoren  $p_1, p_2, p_3$  (und damit  $p_0$ ) gegeben. Wir definieren

$$q_j = \varepsilon p_j^0(1, 0, 0, 0). \quad (18)$$

Der Punkt  $(p_j + iq_j)$  ist nach I ein Regularitätspunkt der Funktion  $\tilde{r}$ . (Falls eine oder mehrere der Summen  $p_j^0 + p_h^0$  verschwinden, muss die Definition (18) etwas abgeändert werden.) Durch Vergleich von (6.1) mit (11), (13), (17) erkennt man

$$\left. \begin{aligned}
 \tilde{\tau}(p_0, \dots, p_3) &= \delta(p_0 + \dots + p_3) \tilde{\tau}'(p_1, p_2, p_3) \\
 \tilde{\tau}'(p_1, p_2, p_3) &= \lim_{\varepsilon \rightarrow 0} \tilde{r}(k_1, k_2, k_3).
 \end{aligned} \right\} \quad (19)$$

Nach dem erwähnten Satz von HALL und WIGHTMAN lässt sich  $\tilde{r}$  als Funktion der Variablen

$$w_{ij} = (k_i + k_j)^2, \quad i, j = 0, \dots, 3 \quad (20)$$

schreiben, wovon sechs unabhängig sind. (18) ergibt dann die Bedingung

$$t_{ij} = \text{Im } w_{ij} = 2 \varepsilon (p_i^0 + p_j^0)^2 > 0,$$

woraus man erhält:

$$\tilde{\tau}'(p_1, p_2, p_3) = \lim_{t_{ij} \downarrow 0} \tilde{r}(w_{ij}). \quad (21)$$

Diese Gleichung hat dieselbe Form wie die Gleichung (6) im  $x$ -Raum. Es ist allerdings zu beachten, dass in Gleichung (6) nur sechs Variable  $u_{ik}$  auftreten, man also für die Grenzwertbildung nur sechs Positivitätsvorschriften zu beachten hat. Im Falle von Gleichung (21) hat man es jedoch mit zehn Variablen  $w_{ij}$  zu tun. Wegen  $w_{01} = w_{23}$  ist allerdings zugleich mit  $t_{01}$  auch  $t_{23}$  positiv usw., es bleiben jedoch auch nach Berücksichtigung dieser Paare sieben Positivitätsvorschriften für die sechs

(beliebig wählbaren) unabhängigen Variablen übrig. Das hängt damit zusammen, dass das in I gegebene Regularitätsgebiet von  $\tilde{r}$  kleiner ist als das bei (2) angegebene Regularitätsgebiet von  $W(\tilde{\zeta}_1, \tilde{\zeta}_2, \tilde{\zeta}_3)$ .

### 8. Eine Bemerkung zur Bedingung II

Wir wollen zeigen, dass im Falle nicht verschwindender Ruhemasse der betrachteten Teilchen das in § 5 im Anschluss an Satz I erwähnte Gebiet  $\mathfrak{H}$  (inklusive einer aus den verschärften Spektralbedingungen folgenden Erweiterung) noch nicht das volle aus unseren Annahmen folgende Regularitätsgebiet der Funktion  $\tilde{r}$  ist, d. h. die Bedingung II hat eine Vergrößerung dieses Gebietes zur Folge. Die Art dieser Vergrößerung ist leider noch nicht bekannt\*).

Wir werden den Beweis auf indirektem Wege führen, indem wir ein Gegenbeispiel zu den sog. Dispersionsrelationen für Streuung zweier Teilchen konstruieren.

Dazu spezialisieren wir unsere Annahmen wie folgt: Das Feld  $A(x)$  soll hermitisch sein und einem Teilchen mit der Ruhemasse 1 entsprechen, das keine Wechselwirkung mit anderen Teilchen aufweist. In der Definition von  $R$  (Gl. (2.9)) ersetzen wir  $A(x)$  durch  $(\square - 1) A(x)$ . Die Eigenschaften A bis C von  $r(x_i)$  aus § 2 werden dadurch nicht berührt, hingegen lässt sich D verschärfen:

$$D_1) \quad \left. \begin{aligned} \tilde{r}(p_1, p_2, p_3) &= \tilde{r}(p_0, p_2, p_3) \text{ falls } p_0^2 < 4, p_1^2 < 4, \\ (p_1 + p_2)^2 &< 4, (p_1 + p_3)^2 < 4. \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

Ebenso gilt nun Gleichung (5.18) für  $p_3^2 < 4$ .

Die Funktion  $\tilde{r}(k_1, k_2, k_3)$  schreiben wir wie in § 7 als Funktion der Variablen

$$\left. \begin{aligned} w_i &= k_i^2, \quad i=0, \dots, 3 \\ w_{ij} &= (k_i + k_j)^2, \quad i=1, 2, 3, j>i. \end{aligned} \right\} \quad (2)$$

Die Eigenschaften A' bis D', I, II aus § 5 bleiben bestehen. Die angegebenen verschärften Spektralbedingungen sind erfüllt, falls die in  $\mathfrak{H}$  auftretenden Schnitte längs den positiv reellen Achsen der  $w$ -Ebenen erst bei 4 einsetzen.

\*. Das endgültige Regularitätsgebiet von  $\tilde{r}$  enthält sicher nicht alle Punkte des bei (7.2) angegebenen Regularitätsgebietes von  $W(\tilde{\zeta}_1, \tilde{\zeta}_2, \tilde{\zeta}_3)$ . Das würde nämlich bedeuten, dass  $\tilde{r}(k_i)$  regulär ist, falls alle  $q_i$  und zwei der drei unabhängigen  $q_i - q_j$ ,  $i \neq j$ , zeitartig sind. Speziell wäre der Punkt  $q_2 + q_3 = 0$ , alle andern  $q_i + q_j$  zeitartig, ein Regularitätspunkt, also wäre  $\tilde{G} \equiv 0$  (siehe (6.18)). Es ist aber

$$G(x_0, \dots, x_3) = \langle [R(x_0, x_1), R(x_2, x_3)] \rangle_0,$$

und dieser Ausdruck ist im allgemeinen sicher von null verschieden.



Aus der Hermitizität von  $A(x)$  folgt, dass  $r(x_0, \dots, x_3)$  rein imaginär ist (siehe LSZ), d. h.

$$\tilde{r}^*(p_1, p_2, p_3) = -\tilde{r}(-p_1, -p_2, -p_3), \quad (3)$$

was durch analytische Fortsetzung ergibt:

$$\tilde{r}^*(k_1^*, k_2^*, k_3^*) = -\tilde{r}(-k_1, -k_2, -k_3). \quad (4)$$

Wir betrachten nun die Streuung zweier Teilchen mit den Anfangsimpulsen  $p, k$  und den Endimpulsen  $p', k'$  ( $p + k = p' + k'$ ). Die zugehörige Streuamplitude  $T(k', p'; k, p)$  ist eine Funktion der Variablen

$$\Delta^2 = -\frac{(k - k')^2}{4}, \quad \omega = \frac{(k + k')(p + p')}{2\sqrt{(p + p')^2}}, \quad (5)$$

und es gilt nach LSZ

$$T(\omega, \Delta^2) = \tilde{r}(k, p, -p') \quad (6)$$

bis auf einen konstanten Faktor. Dabei ist

$$\left. \begin{aligned} k^2 &= p^2 = p'^2 = k'^2 = 1 \\ (p + k)^2 &= 2(1 + \Delta^2 + \omega(1 + \Delta^2)^{1/2}) \\ (k - p')^2 &= 2(1 + \Delta^2 - \omega(1 + \Delta^2)^{1/2}) \\ (p - p')^2 &= -4\Delta^2. \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

Dieses  $T$  erfüllt eine Dispersionsrelation, falls die Impulsübertragung  $\Delta^2 < 2$  ist<sup>14)</sup>. D. h. für  $0 < \Delta^2 < 2$  ist  $T(\omega, \Delta^2)$ , aufgefasst als Funktion von  $\omega$ , analytisch in der ganzen komplexen Ebene mit Ausnahme der Schnitte in der reellen Achse

$$\omega \geq (1 - \Delta^2)(1 + \Delta^2)^{-1/2}, \quad \omega \leq -(1 - \Delta^2)(1 + \Delta^2)^{-1/2}. \quad (8)$$

Die Interpretation von  $T$  als Streuamplitude ist natürlich nur möglich unter Benützung der Asymptotenbedingung; nur dann kann ja eine  $S$ -Matrix definiert werden. Wir können jedoch formal (6) als Definition von  $T$  auffassen. Die genannte Regularitätseigenschaft von  $T$  bleibt dabei bestehen, da in ihrem Beweis die Asymptotenbedingung nicht wesentlich verwendet wird. Können wir also eine in  $\mathfrak{H}$  reguläre Funktion  $\tilde{r}$  angeben, so dass das daraus nach (6) berechnete  $T$  keine Dispersionsrelation erfüllt, so ist gezeigt, dass  $\mathfrak{H}$  noch nicht das volle aus unseren Annahmen folgende Regularitätsgebiet von  $\tilde{r}$  ist.

Ein solches Beispiel soll jetzt gegeben werden. Wir definieren:

$$N(k_1, k_2, k_3) = \sum_{k=0}^3 (z_k + 3^{2/n} z_k^{-1}) + z_{12} + \alpha z_{23}^{-1} - a + i\varepsilon. \quad (9)$$

Dabei bedeutet

$$z_k = (4 - w_k)^{1/n}, z_{ik} = (4 - w_{ik})^{1/n}. \quad (10)$$

Ein in der längs der negativ-reellen Achse aufgeschnittenen Ebene eindeutiger Zweig dieser  $n$ -ten Wurzeln wird ausgewählt durch die Forderung, dass  $w^{1/n}$  für positiv reelle  $w$  positiv reell sein soll.  $n$  ist eine positive ganze Zahl,  $\alpha, a, \varepsilon$  sind positive reelle Zahlen, über deren Grösse wir noch verfügen können.

Unser Beispiel ist

$$\tilde{r}(k_1, k_2, k_3) = \left\{ \prod_{(i_1, i_2, i_3)} N(k_{i_1}, k_{i_2}, k_{i_3}) \right\}^{-1} - \{ \varepsilon \rightarrow -\varepsilon \}, \quad (11)$$

wobei das Produkt  $\prod$  über alle Permutationen der Indizes 1, 2, 3 zu erstrecken ist. Das zweite Glied entsteht aus dem ersten durch die Substitution von  $-\varepsilon$  an Stelle von  $\varepsilon$  und hat die Erfüllung von (4) zur Folge.

(11) befriedigt offensichtlich die Bedingungen A', C' und D' aus § 5. (Es ist  $z_{01} = z_{23}$ , usw.!) Ebenso treten die richtigen Schnitte in den  $w_i$  und  $w_{ik}$  auf, so dass die verschärften Spektralbedingungen (1) erfüllt sind. Wir haben noch zu zeigen, dass unser  $\tilde{r}$  bei geeigneter Wahl der verfügbaren Parameter in den durch I, § 5, definierten Punkten (und damit in §) analytisch ist. Die in I noch geforderten Beschränktheitsbedingungen im  $\infty$  sind erfüllt, da  $\tilde{r}$  im  $\infty$  gegen null strebt.

Als Singularitäten von  $\tilde{r}$  treten erstens die schon erwähnten Schnitte  $w_i$  (oder  $w_{ik}$ )  $\geq 4$  auf. Diese liegen ausserhalb des gewünschten Regularitätsgebietes. Ist nämlich  $q_i^2 > 0$  und  $w_i$  positiv reell, so ist auch  $p_i^2 > 0$ , also  $p_i q_i \neq 0$  im Widerspruch zur Forderung  $Im w_i = 0$ .

Weiterhin können Pole auftreten, die natürlich in den Nullstellen eines der Faktoren  $N$  des Nenners liegen. Diese Nullstellen haben wir also zu untersuchen, soweit sie in der betrachteten Punktmenge I liegen. Wegen der Symmetrie von I genügt es, die Funktion  $N(k_1, k_2, k_3)$  zu diskutieren.

Zuerst betrachten wir den in (9) auftretenden Ausdruck

$$z_i + 3^{2/n} z_i^{-1}.$$

Nach der Definition (10) liegen alle  $z_i$  (und auch alle  $z_{ik}$ ) in einem Keil längs der positiv reellen Achse mit der Spitze im Ursprung und dem halben Öffnungswinkel  $\varphi = \pi/n$ :

$$Re z_i \geq 0, \quad |Im z_i| \leq (Re z_i) \cdot \operatorname{tg} \varphi \quad (12)$$

$\varphi$  kann durch geeignete Wahl von  $n$  beliebig klein gemacht werden. Wir werden voraussetzen, dass  $n$  gross ist (z. B.  $n \geq 10$ ).

Sei

$$y_i = Re (z_i + 3^{2/n} z_i^{-1}). \quad (13)$$

Es gilt

$$y_i \geqslant (|z_i| + 3^{2/n} |z_i|^{-1}) \cos \varphi$$

wegen (12) und weil mit  $z_i$  auch  $z_i^{-1}$  im Keil (12) liegt. Die in dieser Ungleichung auftretende Funktion von  $|z_i|$  (ohne den Faktor  $\cos \varphi$ ) nimmt ihr Minimum an für  $|z_i| = 3^{1/n}$ . Dieser Minimalwert beträgt

$$\mu = 2 \cdot 3^{1/n}. \quad (14)$$

Also

$$y_i \geqslant \mu \cos \varphi. \quad (15)$$

Wir führen die neue Konstante

$$\delta = a - 4 \mu \cos \varphi \quad (16)$$

ein und wählen  $a$  so, dass  $0 < \delta \ll 1$ .

Sei nun  $(k_1, k_2, k_3)$  eine Nullstelle von  $N(k_1, k_2, k_3)$  mit  $(q_i + q_j)^2 > 0$  für alle  $i, j = 0, \dots, 3$ .

Mit  $N$  muss natürlich auch  $\operatorname{Re} N$  verschwinden.  $\operatorname{Re} N$  ist von der Form

$$\operatorname{Re} N = A + B + C - \delta \quad (17)$$

mit

$$\left. \begin{aligned} A &= \sum_{k=0}^3 y_k - 4 \mu \cos \varphi \geqslant 0 \\ B &= \operatorname{Re} z_{12} \geqslant 0 \\ C &= \alpha \operatorname{Re}(z_{23}^{-1}) \geqslant 0. \end{aligned} \right\} \quad (18)$$

Aus  $\operatorname{Re} N = 0$  folgt also

$$A \leqslant \delta, B \leqslant \delta, C \leqslant \delta. \quad (19)$$

Wir werden zeigen, dass diese Ungleichungen bei geeigneter Wahl von  $\alpha$  und  $n$  einen Widerspruch enthalten. Bei den folgenden Abschätzungen werden wir folgende Bezeichnungsweise verwenden:

$a \sim b$  heisst  $a = b$  bis auf einen Term der Ordnung  $o(\delta)/\delta + o(n)/n$

$a \lesssim b$  heisst  $a < b$  bis auf einen Term derselben Ordnung.

Aus  $B \leqslant \delta$  (d. h.  $B \sim 0$ ) folgt wegen (12), dass  $z_{12} \sim 0$  sein muss, also  $w_{12} \sim 4$ . Das bedeutet

$$(p_1 + p_2)^2 - (q_1 + q_2)^2 \sim 4, \quad (p_1 + p_2)(q_1 + q_2) \sim 0. \quad (20)$$

Das ist mit der Bedingung  $(q_1 + q_2)^2 > 0$  nur verträglich, falls

$$(q_1 + q_2)^2 \sim 0, \quad (p_1 + p_2)^2 \sim 4. \quad (21)$$

Wegen  $k_1 + k_2 = -k_0 - k_3$  gilt auch

$$(q_0 + q_3)^2 \sim 0, \quad (p_0 + p_3)^2 \sim 4, \quad (p_0 + p_3)(q_0 + q_3) \sim 0. \quad (22)$$

Aus  $A \leq \delta$  (also  $A \sim 0$ ) folgt, dass alle  $y_i$  in der Nähe des Minimalwertes  $\mu \cos \varphi$  liegen müssen, d. h.

$$|z_i| \sim 3^{1/n} \rightarrow |4 - w_i| \sim 3, \quad i = 0, \dots, 3.$$

Die  $w_i$  liegen also alle in der Nähe des Kreises vom Radius 3 um den Punkt  $w = 4$ . Speziell muss gelten:

$$1 \lesssim \operatorname{Re} w_i = p_i^2 - q_i^2 \lesssim 7, \quad |\operatorname{Im} w_i| \lesssim 3, \quad (23)$$

woraus wegen  $q_i^2 > 0$  folgt:

$$p_i^2 \gtrsim 1. \quad (24)$$

Wir haben zwei Fälle zu unterscheiden:

1. Fall:  $p_1 \in V_+$ ,  $p_2 \in V_-$  (oder umgekehrt).

Dann gilt (in Analogie zur Dreiecksungleichung im Falle einer definiten Metrik) die Ungleichung:

$$(p_1 + p_2)^2 \leq (\sqrt{p_1^2} - \sqrt{p_2^2})^2,$$

woraus wegen (21) und (24):

$$\sqrt{p_1^2} \gtrsim \sqrt{p_2^2} + 2 \gtrsim 3 \quad \text{oder} \quad \sqrt{p_2^2} \gtrsim \sqrt{p_1^2} + 2 \gtrsim 3.$$

Also, für  $i = 1$  oder  $2$ :

$$p_i^2 \gtrsim 9.$$

Wegen (23) muss dann  $q_i^2 \gtrsim 2$  sein, und somit  $|\operatorname{Im} u_i| = 2|p_i q_i| \gtrsim 2 \cdot 3 \sqrt{2}$ , im Widerspruch zur zweiten Bedingung in (23).

Dieser Fall kann somit nicht auftreten. Genau gleich können wir auch den Fall ausschliessen, dass  $p_0$  und  $p_3$  in verschiedenen Halbkegeln liegen.

2. Fall:

$$p_1 \in V_+, p_2 \in V_+, p_0 \in V_-, p_3 \in V_-. \quad (25)$$

(Der daraus durch Vorzeichenwechsel aller  $p_i$  entstehende Fall ergibt nichts Neues.)

Aus (24) ergibt sich  $p_1 p_2 \gtrsim 1$ , also ist (21) nur möglich, falls

$$\left. \begin{aligned} p_1^2 \sim p_2^2 \sim p_1 p_2 \sim 1, \\ p_0^2 \sim p_3^2 \sim p_0 p_3 \sim 1. \end{aligned} \right\} \quad (26)$$

und ebenso

Weiter, wegen  $p_0 + p_3 = -p_1 - p_2$ :

$$(p_0 + p_3)(p_1 + p_2) \sim -4.$$

Alle vier linksstehenden Terme sind wegen (24) und (25)  $\lesssim -1$ , also

$$p_i p_j \sim -1, \quad i = 0, 3, \quad j = 1, 2. \quad (27)$$

Da alle  $w_i$  auf dem erwähnten Kreis liegen müssen, folgt aus (26):

$$w_i \sim 1, \text{ also } p_i q_i \sim 0, \quad q_i^2 \sim 0, \quad (28)$$

und damit aus (21) und (22):

$$q_1 q_2 \sim q_0 q_3 \sim 0. \quad (29)$$

Ferner:

$$q_0^2 = -q_0(q_1 + q_2 + q_3) \sim 0, \quad (30)$$

also

$$q_0 q_1 + q_0 q_2 \sim 0,$$

woraus

$$q_0 q_1 \sim q_0 q_2 \sim 0, \quad (31)$$

wenn  $q_1$  und  $q_2$  im gleichen Halbkegel liegen. Dann aber auch

$$(q_2 + q_3)^2 = (q_0 + q_1)^2 \sim 0,$$

d. h.

$$q_2 q_3 \sim 0 \quad \text{und analog} \quad q_1 q_3 \sim 0. \quad (32)$$

Ebenso lassen sich (31) und (32) beweisen, falls  $q_0$  und  $q_3$  im gleichen Halbkegel liegen.

Sei nun keine der beiden Annahmen erfüllt, z. B.

$$q_0 \in V_-, q_1 \in V_+, q_2 \in V_-, q_3 \in V_+, \text{ aber } (q_2 + q_3) \in V_+.$$

(Alle andern Fälle sind von der gleichen Struktur und lassen sich deshalb analog behandeln.) Aus (30) ergibt sich dann:

$$q_0 q_1 + q_0 (q_2 + q_3) \sim 0.$$

Beide Terme sind negativ, also

$$q_0 q_1 \sim 0, \quad q_0 (q_2 + q_3) \sim 0, \text{ d. h. } q_0 q_2 \sim 0 \text{ wegen (29).}$$

Dann aber auch

$$q_2 q_3 \sim 0, \quad q_1 q_3 \sim 0,$$

die Gleichungen (31) und (32) gelten also auch in diesem Fall.



Zusammenfassend haben wir bis jetzt gefunden:

$$p_i p_k \sim \pm 1, \quad q_i q_k \sim 0, \quad p_i q_i \sim 0, \quad i, k = 0, \dots, 3. \quad (33)$$

Wir haben nun noch die Bedingung  $C \leq \delta$  aus (19) zu diskutieren:  
Aus (33) ergibt sich

$$\operatorname{Re} w_{23} = (p_2 + p_3)^2 - (q_2 + q_3)^2 \sim 0, \quad (34)$$

da  $p_2$  und  $p_3$  nach (25) in verschiedenen Halbkugeln liegen; und

$$\operatorname{Im} w_{23} = 2(p_2 + p_3)(q_2 + q_3) \sim 2(p_2 q_3 + p_3 q_2). \quad (35)$$

Sei  $q_3 \in V_+$ . Dann

$$(p_3 + q_3)^2 = p_3^2 + q_3^2 + 2p_3 q_3 \sim 1,$$

d. h.  $(p_3 + q_3) \in V_-$ . Also ist  $p_2(p_3 + q_3) < 0$  und damit

$$0 < p_2 q_3 < -p_2 p_3 \sim 1.$$

Auf ähnliche Weise zeigt man im Falle  $q_3 \in V_-$ :

$$0 > p_2 q_3 > p_2 p_3 \sim -1,$$

also  $|p_2 q_3| \lesssim 1$ , und analog  $|p_3 q_2| \lesssim 1$ . (35) wird damit zu

$$|\operatorname{Im} w_{23}| \lesssim 4. \quad (36)$$

$C \leq \delta$  bedeutet

$$\operatorname{Re} z_{23}^{-1} \leq \frac{\delta}{\alpha}, \quad (37)$$

was nach (12) ergibt

$$|z_{23}|^{-1} \leq \frac{\delta}{\alpha \cos \varphi}$$

und schliesslich

$$|z_{23}|^{2n} = |4 - w_{23}|^2 \geq \left[ \frac{\alpha \cos \varphi}{\delta} \right]^{2n}. \quad (38)$$

Aber, nach (34) und (36):

$$\begin{aligned} |4 - w_{23}|^2 &= (4 - \operatorname{Re} w_{23})^2 + (\operatorname{Im} w_{23})^2 \\ &\lesssim 16 + 16 = 32. \end{aligned}$$

Aus (38) folgt damit:

$$\left[ \frac{\alpha \cos \varphi}{\delta} \right]^{2n} \lesssim 32. \quad (39)$$

Wir können sicher  $\alpha, \delta, n$  so wählen, dass

$$\left[ \frac{\alpha \cos \varphi}{\delta} \right]^{2n} > 33. \quad (40)$$

Dann ist Bedingung (39) verletzt, also hat  $\operatorname{Re} N$  – und damit auch  $N$  selbst – keine Nullstellen in  $\mathfrak{H}$ . Das durch (11) definierte  $\tilde{r}$  erfüllt also alle in § 5 angegebenen Bedingungen mit Ausnahme der Identität II, falls wir die verfügbaren Konstanten so wählen, dass Bedingung (40) erfüllt ist.

Die zugehörige Streuamplitude  $T(\omega, \Delta^2)$  ergibt sich aus  $\tilde{r}$  gemäss (6) und (7) durch Einsetzen der Argumente

$$\left. \begin{aligned} w_i &= 1, \quad i = 0, \dots, 3 \\ w_{12} &= 2(1 + \Delta^2 + \omega(1 + \Delta^2)^{1/2}) \\ w_{13} &= 2(1 + \Delta^2 - \omega(1 + \Delta^2)^{1/2}) \\ w_{23} &= -4\Delta^2. \end{aligned} \right\} \quad (41)$$

Wir halten  $\Delta^2 \geq 0$  fest und betrachten  $T$  als Funktion der komplexen Variablen  $\omega$ . Es ist zu untersuchen, für welche Werte von  $\Delta^2$   $T$  in der geschnittenen  $\omega$ -Ebene (8) analytisch ist.

Als mögliche Singularitäten von  $T$  treten wieder die bekannten Schnitte in der Definition von  $z_i$  und  $z_{ik}$  sowie Pole auf. Die Schnitte in den  $z_i$  und in  $z_{23}$  spielen keine Rolle wegen  $w_i < 4$  und  $w_{23} < 4$ . Die durch  $z_{12}$  und  $z_{13}$  erzeugten Schnitte sind gerade die gewünschten (siehe (8)). Eine Dispersionsrelation besteht also, falls keine Pole auftreten, d. h. falls der Nenner in der Definition von  $T$  nirgends verschwindet.

Es ist

$$\left. \begin{aligned} z_{12} &= [2(1 - \Delta^2 - \omega(1 + \Delta^2)^{1/2})]^{1/n} \\ z_{13} &= [2(1 - \Delta^2 + \omega(1 + \Delta^2)^{1/2})]^{1/n} \\ z_{23} &= [4(1 + \Delta^2)]^{1/n}. \end{aligned} \right\} \quad (42)$$

Also wird (9) zu

$$N(k_i, k_j, k_h) = 4\mu + z_{ij} + \alpha z_{jh}^{-1} - a + i\varepsilon, \quad (43)$$

( $i, j, h$ ) eine Permutation von (1, 2, 3).

Nach (16) ist

$$4\mu - a = 4\mu(1 - \cos \varphi) - \delta. \quad (44)$$

$N = 0$  bedeutet also

$$z_{ij} + \alpha z_{jh}^{-1} = \delta - 4\mu(1 - \cos \varphi) - i\varepsilon. \quad (45)$$

Der Realteil des links stehenden Ausdrucks ist nie negativ, Lösungen existieren also höchstens, falls

$$\delta \geq 4\mu(1 - \cos \varphi). \quad (46)$$

Diese Ungleichung sei erfüllt.

Wir betrachten zuerst den Fall  $i = 2, j = 1, h = 3$ . Aus (45) folgt:

$$\operatorname{Re} z_{12} \leq \delta, \text{ d. h. } z_{12} \sim 0,$$

also nach (42):

$$\omega \sim (1 - \Delta^2) (1 + \Delta^2)^{-1/2}$$

und damit

$$z_{13} \sim [4 (1 - \Delta^2)]^{1/n}.$$

Aus der weiteren Bedingung  $\operatorname{Re} z_{13}^{-1} < \delta/\alpha$  folgt wie bei (37):

$$|z_{13}|^n \sim 4 |1 - \Delta^2| > \left[ \frac{\alpha \cos \varphi}{\delta} \right]^n > \sqrt{33},$$

also wegen  $\Delta^2 \geq 0$ :

$$4 \Delta^2 > 4 + \sqrt{33} > 2 \cdot 4.$$

Unterhalb der Lehmannschen Schranke  $\Delta^2 = 2$  gibt der hier diskutierte Faktor  $N$  zu keinem Pol Anlass.

Ebenso erhalten wir im Falle  $i = 2, j = 3, h = 1$  keine Nullstellen von  $N$ . In einer solchen müsste nämlich gelten

$$\operatorname{Re} z_{23} < \delta, \text{ d. h. } 1 + \Delta^2 \sim 0,$$

was wegen  $\Delta^2 \geq 0$  nicht möglich ist.

Zu diskutieren bleibt noch der Fall  $i = 1, j = 2, h = 3$ . (Die andern drei Fälle unterscheiden sich von den hier diskutierten nicht wesentlich, sie entstehen daraus durch Vorzeichenumkehr von  $\omega$ .) Hier wird (45) zu

$$z_{12} = \delta - 4 \mu (1 - \cos \varphi) - i \varepsilon - \alpha [4(1 + \Delta^2)]^{-1/n}. \quad (47)$$

Wir definieren eine Konstante  $\overline{\Delta^2}$  durch

$$\delta = 4 \mu (1 - \cos \varphi) + \alpha [4(1 + \overline{\Delta^2})]^{-1/n}. \quad (48)$$

(47) wird damit zu

$$z_{12} = \alpha [4(1 + \overline{\Delta^2})]^{-1/n} - \alpha [4(1 + \Delta^2)]^{-1/n} - i \varepsilon. \quad (49)$$

Ist nun  $\Delta^2 > \overline{\Delta^2}$  und  $\varepsilon$  genügend klein, so liegt die rechte Seite dieser Gleichung im Keil (12). Dann kann das so bestimmte  $z_{12}$  nach  $\omega$  aufgelöst werden, wobei das  $\varepsilon$ -Glied bewirkt, dass dieser Pol von  $T$  (um einen solchen handelt es sich ja) nicht gerade auf die reelle Achse zu liegen kommt.

Eine Dispersionsrelation besteht also nicht für  $\Delta^2 > \overline{\Delta^2}$ !

$\overline{A^2}$  ist nicht beliebig wählbar. Aus den Bedingungen (40) und (46) ergibt sich:

$$[4(1 + \overline{A^2})]^{1/n} = \frac{\alpha}{\delta - 4\mu(1 - \cos \varphi)} > \frac{\alpha}{\delta},$$

$$4(1 + \overline{A^2}) > \left(\frac{\alpha}{\delta}\right)^n > \sqrt[3]{33},$$

also

$$\overline{A^2} > \frac{\sqrt[3]{33} - 4}{4}. \quad (50)$$

Sei nun umgekehrt ein  $\overline{A^2}$  vorgegeben, das (50) erfüllt. Ebenso geben wir ein  $\delta \ll 1$  vor. Zu jedem  $n$  ergibt dann (48) einen Wert von  $\alpha$ . Bedingung (46) kann offensichtlich durch Wahl eines genügend grossen  $n$  erfüllt werden ( $\varphi = \pi/n$  kann beliebig klein gemacht werden). Aus (48) folgt

$$\frac{\delta}{\alpha} = \frac{4\mu}{\alpha} (1 - \cos \varphi) + [4(1 + \overline{A^2})]^{-1/n}.$$

Man erhält daraus

$$\lim_{n \rightarrow \infty} \left( \frac{\delta}{\alpha \cos \varphi} \right)^{2n} [16(1 + \overline{A^2})^2]^{-1} < 33^{-1}.$$

Für ein genügend grosses  $n$  ist also auch Bedingung (40) erfüllt.

Wir haben somit folgendes Ergebnis: Die Konstanten  $a$ ,  $\alpha$ ,  $n$  und  $\varepsilon$  in unserem Beispiel können so gewählt werden, dass  $\tilde{r}$  alle Bedingungen mit Ausnahme von II erfüllt, dass aber die zugehörige Streuamplitude für Impulsübertragungen  $A^2$ , die grösser als eine vorgegebene Zahl  $\overline{A^2}$  sind, keiner Dispersionsrelation genügt, wenn nur diese Zahl  $\overline{A^2}$  der Bedingung (50) entspricht. Die in (50) gegebene Schranke ist aber kleiner als die Lehmannsche Schranke  $\overline{A^2} = 2$ .

Damit ist unsere Behauptung bewiesen, dass  $\mathfrak{H}$  zumindest im Falle nicht verschwindender Ruhemasse noch nicht das volle Regularitätsgebiet von  $\tilde{r}$  ist.

Meinem verehrten Lehrer, Herrn Professor JOST, möchte ich danken für die Anregung zu dieser Arbeit und für zahlreiche fördernde Diskussionen während ihrer Ausführung. Dem Schweizerischen Nationalfonds zur Förderung der wissenschaftlichen Forschung habe ich für ein Stipendium zu danken.

### Literatur

- <sup>1)</sup> A. S. WIGHTMAN, Phys. Rev. 101, 860 (1956).
- <sup>2)</sup> R. JOST, Helv. Phys. Acta 30, 409 (1957).
- <sup>3)</sup> N. BURGEOYNE, Nuovo Cim. 8, 607 (1958). — G. LÜDERS und B. ZUMINO, Phys. Rev. 110, 1450 (1958).

- <sup>4)</sup> H. LEHMANN, K. SYMANZIK und W. ZIMMERMANN, *Nuovo Cim.* **6**, 319 (1957). – V. GLASER, H. LEHMANN und W. ZIMMERMANN, *Nuovo Cim.* **6**, 1122 (1957) (zitiert als LSZ resp. GLZ).
- <sup>5)</sup> H. LEHMANN, K. SYMANZIK und W. ZIMMERMANN, *Nuovo Cim.* **7**, 205 (1955).
- <sup>6)</sup> R. JOST, *Helv. Phys. Acta* **31**, 263 (1958).
- <sup>7)</sup> L. SCHWARTZ, *Théorie des distributions* (Verlag Hermann, Paris), Bd. I, 2. Aufl, 1957, Bd. II, 1951 (zitiert als SCHWARTZ I, II).
- <sup>8)</sup> L. SCHWARTZ, *Marcel-Riesz-Festschrift*, Suppl. zu *Medd. Lunds mat. sem.* 1952.
- <sup>9)</sup> D. HALL und A. S. WIGHTMAN, *Dan. mat. fys. medd.* **37**, No. 5 (1957).
- <sup>10)</sup> S. BOCHNER und W. MARTIN, *Several Complex Variables* (Princeton 1948), p. 34.
- <sup>11)</sup> SCHWARTZ II, p. 89.
- <sup>12)</sup> SCHWARTZ I, p. 74, und II, p. 94.
- <sup>13)</sup> K. NISHIJIMA, *Phys. Rev.* **111**, 995 (1958).
- <sup>14)</sup> H. LEHMANN, *Nuovo Cim.* **10**, 579 (1958).



## Polarisations- und Streuexperimente mit 4 MeV-Protonen

von **J. Saladin\*** und **P. Marmier**

Cyclotronlaboratorium des Physikalischen Instituts der ETH, Zürich

(7. XII. 1959)

*Summary.* The polarization and differential cross sections of elastically scattered 4 MeV-protons has been measured as a function of the scattering angle for Al, Mg, Ti and V. Experimental results for Al are compared with predictions from optical model theory. It is found that good qualitative agreement is obtained. For Al, Mg and Ti. The angular distribution of inelastically scattered protons is also quoted and discussed.

### I. Einleitung

In den letzten Jahren haben eine Reihe von theoretischen und experimentellen Untersuchungen gezeigt, dass viele Phänomene auf Grund der Vorstellung eines gemeinsamen Kernpotentials verstanden werden können. Diese Erkenntnis folgte aus zwei Gruppen von experimentellen Daten, d. h. einerseits aus Streumessungen und andererseits aus der Kernspektroskopie.

Die Untersuchung der elastischen Streuung von Partikeln ergibt zunächst Aussagen über die Feinstruktur von Kernen. So findet man z. B. aus den bei bestimmten Winkeln und Energien auftretenden Resonanzen der differentiellen Wirkungsquerschnitte die Anregungsenergien der Niveaus im Zwischenkern. Die Winkelabhängigkeit der Wirkungsquerschnitte gibt ferner Informationen über Spin und Parität der Zustände.

Man ist heute weit davon entfernt, diese Feinstruktur bis in alle Einzelheiten zu verstehen. Dagegen kann die Grobstruktur, d. h. das Verhalten bei Mittelung über sehr viele Resonanzen, gut erklärt werden mit Hilfe der Vorstellung eines gemeinsamen Kernpotentials, das auf die einfallenden Partikel wirkt. Aussagen über die Grobstruktur ergeben sich demnach dann, wenn beim Streuprozess im Zwischenkern viele Zustände beteiligt sind. Dies bedeutet, dass entweder die Energiebreite der einzelnen Zustände gross sein muss gegenüber dem mittleren Niveauabstand, oder

---

\*) Gegenwärtige Adresse: Physics Department, University of Wisconsin, Madison, Wisconsin (USA).

dass zumindest die Energiebreite des einfallenden Teilchenstrahls ausreichen muss, um eine grosse Zahl von Zuständen im Zwischenkern einzubeziehen.

Das gemeinsame Potential wird komplex gewählt. Der Imaginärteil trägt in Analogie zur Optik der Absorption von Teilchen Rechnung. Dabei fallen unter den Begriff der Absorption sämtliche Kernreaktionen und inelastischen Streuungen sowie alle Prozesse, die über die Bildung eines Zwischenkerns verlaufen. Mehrere Autoren<sup>1)2)3)</sup> haben mit einem solchen optischen Potential die differentiellen Wirkungsquerschnitte elastisch an mittleren und schweren Kernen gestreuter Neutronen und Protonen in einem Energiebereich von 4 bis 300 MeV gut erklären können. WEISSKOPF<sup>4)</sup> und Mitarbeiter haben ausserdem mit Hilfe dieses optischen Modells auch für den Verlauf des totalen Wirkungsquerschnittes von Neutronenreaktionen in Funktion des Atomgewichtes der Targetkerne und der Neutronenenergie gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten erhalten.

Mit dem Schalenmodell der Kerne kann eine zweite Gruppe von experimentellen Daten interpretiert werden. Auch hier wird die Wirkung der Nukleonen eines Kerns auf ein einzelnes Nukleon durch ein gemeinsames Potential beschrieben. Das Schalenmodell vermag die Spins der Grundzustände und in der Umgebung von abgeschlossenen Schalen auch diejenigen der ersten angeregten Zustände gut wiederzugeben. Um aber Übereinstimmung zu erhalten, muss das Potential einen Spin-Bahnkopplungsterm enthalten.

Es stellt sich die Frage, ob nicht auch das Potential des optischen Modells mit einem solchen Term versehen werden muss. Dies lässt sich durch Analyse der differentiellen Wirkungsquerschnitte elastisch gestreuter Partikel nicht befriedigend beantworten. Besonders im Gebiete kleiner Energien können durch geeignete Variationen von Form und Tiefe des Potentials ähnliche Effekte erzeugt werden, wie sie die Addition einer Spin-Bahnkopplungskomponente zur Folge hat. So wird z. B. der theoretische differentielle Wirkungsquerschnitt elastisch gestreuter 14 MeV-Neutronen durch einen Spinbahnkopplungsterm nur sehr wenig beeinflusst<sup>5)</sup>. Dagegen scheinen die Analysen von Messungen mit 17 MeV-Protonen die Existenz einer solchen Komponente zu fordern<sup>6)</sup>.

Genauere Aussagen über die Spin-Bahnwechselwirkung erhält man dagegen, wenn ausser dem differentiellen Wirkungsquerschnitt auch die Polarisation elastisch gestreuter Partikel gemessen wird. In der vorliegenden Arbeit werden Polarisations- und Streumessungen von 4 MeV-Protonen an Mg, Al, V und Ti Kernen beschrieben und diskutiert. ROSEN und BROLLEY<sup>7)</sup> haben ähnliche Messungen mit 10 MeV-Protonen, BROCKMAN und BLANPIED<sup>8)9)</sup> mit 17 MeV-Protonen ausgeführt.

## II. Experimentelles

### A. Die Polarisationsmessungen

#### 1. Das Prinzip der Messung

Die Bestimmung der Polarisation elastisch gestreuter Protonen geschieht mit Hilfe einer zweiten Streuung durch Messung der Links-Rechts-asymmetrie der Winkelverteilung. Dieses Doppelstreuexperiment wird durch Figur 1 illustriert. Ein Strahl unpolarisierter Protonen trifft auf die

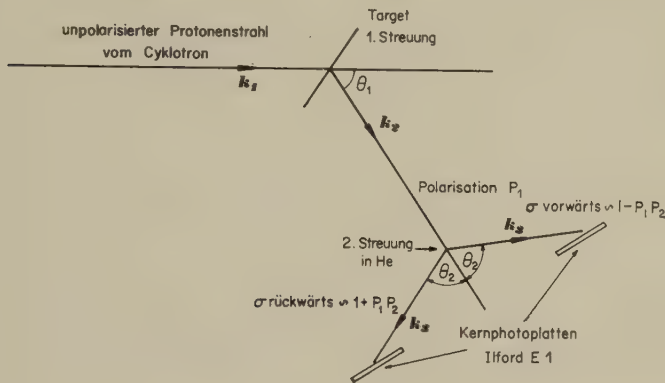


Fig. 1

Schematische Darstellung des Polarisationsexperimentes

zu untersuchenden Kerne und wird an diesen gestreut. Die unter dem Winkel  $\Theta_1$  emittierten Protonen werden einer zweiten Streuung an He unterworfen. Besitzen die Protonen nach der ersten Streuung die Polarisation  $P_1$ , so wird der Wirkungsquerschnitt der zweiten Streuung durch

$$\frac{d\sigma}{d\omega}(\theta_2, \varphi) = \frac{d\sigma^*}{d\omega}(\theta_2) \{1 + P_1(\theta_1) P_2(\theta_2) \mathbf{n}_1 \mathbf{n}_2\} \quad (1)$$

gegeben<sup>10)</sup>. Dabei bedeutet  $d\sigma^*/d\omega(\Theta_2)$  den differentiellen Wirkungsquerschnitt für unpolarisierte Teilchen und  $P_2(\Theta_2)$  ist die Polarisation, die ein ursprünglich unpolarisierter Strahl durch eine Streuung an He erleidet. Die Vektoren  $\mathbf{n}_1$  und  $\mathbf{n}_2$  bezeichnen die Normalen zu den Streuebenen, die durch die Fortpflanzungsvektoren  $\mathbf{k}_1$  und  $\mathbf{k}_2$  beziehungsweise  $\mathbf{k}_2$  und  $\mathbf{k}_3$  gebildet werden. Sie sind durch die Beziehungen

$$\mathbf{n}_1 = \frac{\mathbf{k}_2 \times \mathbf{k}_1}{|\mathbf{k}_2 \times \mathbf{k}_1|} \quad \text{und} \quad \mathbf{n}_2 = \frac{\mathbf{k}_3 \times \mathbf{k}_2}{|\mathbf{k}_3 \times \mathbf{k}_2|} \quad (2)$$

definiert.  $\varphi$  ist der Winkel zwischen  $\mathbf{n}_1$  und  $\mathbf{n}_2$ . Finden beide Streuungen in derselben Ebene statt, so ist

$$\mathbf{n}_1 \mathbf{n}_2 = \pm 1$$

und damit ergibt sich (siehe Fig. 1)

$$\left. \begin{aligned} \frac{d\sigma}{d\omega}(\theta_2)_{\text{vorwärts}} &= \frac{d\sigma^*}{d\omega}(\theta_2) \{1 - P_1(\theta_1) P_2(\theta_2)\} \\ \frac{d\sigma}{d\omega}(\theta_2)_{\text{rückwärts}} &= \frac{d\sigma^*}{d\omega}(\theta_2) \{1 + P_1(\theta_1) P_2(\theta_2)\} \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

Aus dieser Links-Rechtsasymmetrie der zweiten Streuung lässt sich bei bekanntem  $P_2(\theta_2)$  die Polarisation  $P_1(\theta_1)$  berechnen. Führt man das Verhältnis

$$R = \frac{\text{Anzahl vorwärts gestreuter Partikel}}{\text{Anzahl rückwärts gestreuter Partikel}}$$

ein, so gilt

$$R = \frac{1 - P_1(\theta_1) P_2(\theta_2)}{1 + P_1(\theta_1) P_2(\theta_2)}, \quad (4)$$

woraus sich für  $P_1(\theta_1)$  der folgende Ausdruck ergibt:

$$P_1(\theta_1) = \frac{1}{P_2(\theta_2)} \cdot \frac{1 - R}{1 + R} \quad (5)$$

Die Polarisation  $P_2(\theta_2)$  kann aus den Streuphasen der Proton-Helium-streuung berechnet werden. Kann diese Streuung durch  $s$ - und  $p$ -Phasen allein beschrieben werden, so gelten die Beziehungen<sup>11)</sup>

$$\begin{aligned} P_2 \frac{d\sigma}{d\omega} &= 2 \lambda^2 \sin \theta \sin (\delta_1^+ - \delta_1^-) \{ \sin \delta_0 \sin (\delta_1^+ + \delta_1^- + \sigma_1 - \delta_0) \\ &\quad - \frac{\eta}{2 s^2} \sin (\delta_1^+ + \delta_1^- + \sigma_1 + \eta \ln s^2) + 3 \cos \theta \sin \delta_1^+ \sin \delta_1^- \} n \end{aligned} \quad (6)$$

und

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma}{d\omega} &= \lambda^2 \left\{ \left| -\frac{\eta}{2 s^2} e^{-i\eta \ln s^2} + \sin \delta_0 e^{i\delta_0} + \cos \theta [2 \sin \delta_1^+ e^{i(\delta_1^+ + \sigma_1)} \right. \right. \\ &\quad \left. \left. + \sin \delta_1^- e^{i(\delta_1^- + \sigma_1)}] \right|^2 + \sin^2 \theta \sin^2 (\delta_1^+ - \delta_1^-) \right\} \end{aligned} \quad (7)$$

mit der folgenden Bedeutung der Symbole:

$$\delta_1^+ = p^{3/2}\text{-Phase}$$

$$\delta_1^- = p^{1/2}\text{-Phase}$$

$$\delta_0 = s \text{ -Phase}$$

$$\eta = \frac{Ze^2}{\hbar v} \quad s = \sin \frac{\theta}{2}$$

$$\sigma_1 = 2 \arctan \eta \quad n = \frac{\mathbf{k}' \times \mathbf{k}}{|\mathbf{k}' \times \mathbf{k}|}$$

$$\lambda = \frac{\hbar}{Mv}$$

Dabei ist 
$$M = \frac{M_p M_T}{M_p + M_T}$$

die reduzierte Masse des Systems Proton-Targetkern, wenn  $M_p$  und  $M_T$  die Massen des Protons beziehungsweise des Targetkerns bezeichnen und  $Z$  dessen Kernladungszahl darstellt.  $v$  steht für die Relativgeschwindigkeit der Teilchen und  $\Theta$  bedeutet den Streuwinkel. Die Normale  $\mathbf{n}$  zur Streuebene ist wiederum mit Hilfe der Fortpflanzungsvektoren  $\mathbf{k}$  und  $\mathbf{k}'$  der Protonen vor und nach dem Stoss definiert. Für Helium liegt eine grössere Anzahl von Protonen-Helium-Streuexperimenten im Energiebereich von 0,95 bis 9,5 MeV<sup>12)13)</sup> vor, ferner existieren Messungen bei 17,5 und 39,8 MeV<sup>14)15)</sup>. Die entsprechenden Phasenanalysen haben verschiedene Autoren ausgeführt<sup>16-19)</sup> und sind durch mehrere Polarisationsexperimente gut bestätigt<sup>20-23)</sup>.

Im vorliegenden Experiment findet die Streuung an den Heliumkernen bei einer Energie von 1,8 bis 2,6 MeV statt und die Protonen werden in einem Winkelbereich von  $\Theta = 60^\circ$  bis  $70^\circ$  bzw.  $\Theta_{CM} = 73^\circ$  bis  $90^\circ$  durch Kernphotoplatten registriert.

Zur Auswertung war es deshalb notwendig, in diesem Bereich der Parameter die Polarisation  $P_2(\Theta_2)$  aus den bekannten Phasen mit Hilfe der Beziehungen (6,7) zu berechnen. Figur 2 zeigt das Resultat.

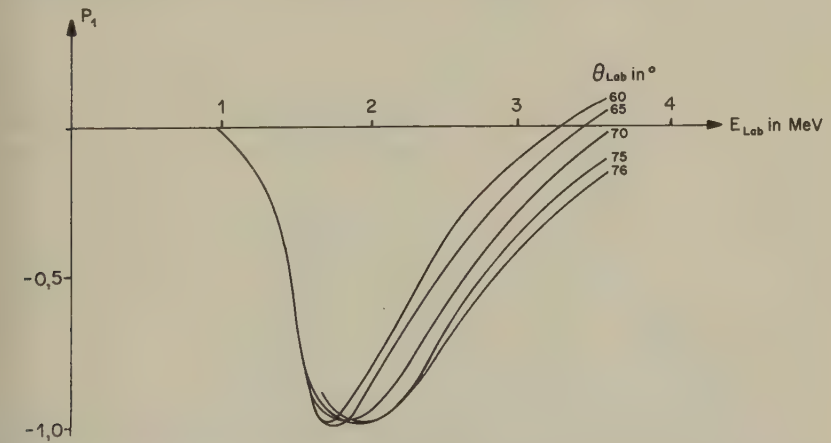


Fig. 2  
Polarisation elastisch an He gestreuter Protonen in Funktion der Protonenenergie  $E_{Lab}$ , mit den Streuwinkeln  $\Theta_{Lab} = 60^\circ, 65^\circ, 70^\circ, 75^\circ, 76^\circ$  als Parameter

2. Die Apparatur

Die wesentlichen Teile der experimentellen Anordnung sind in Figur 3 dargestellt. Das Cyclotron der ETH wurde für die vorliegenden Messungen mit einer reduzierten Protonenenergie von  $(4,05 \pm 0,05)$  MeV be-



trieben. Die Strahlintensität beträgt 0,5 bis  $1,2 \mu\text{A}$  und die Protonen werden mittels eines Sammelmagneten und zwei Paaren magnetischer Vierpollinsen<sup>24)</sup> auf die Target fokussiert. Durch eine verschiebbare

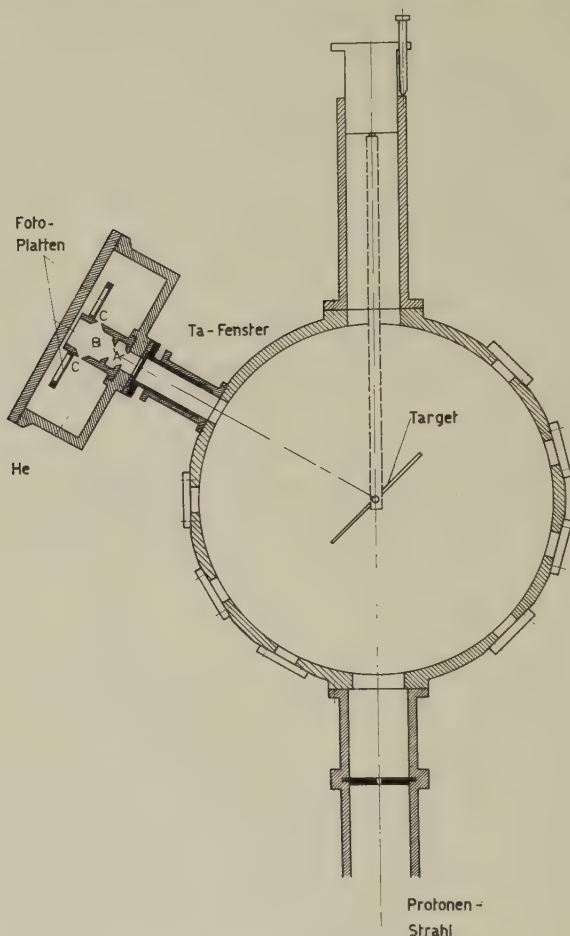


Fig. 3

Messapparatur für die Polarisationsmessungen. A bezeichnet die beiden  $9 \times 9$  mm-Blenden, die den gestreuten Strahl definieren. B ist der Volumenteil, in welchem die zweite Streuung an den Heliumkernen stattfindet und C sind zwei  $2 \times 9$  mm-Blenden, welche die Streuwinkel bestimmen

Blende aus Blei und Tantal wird der Strahlquerschnitt auf ein Rechteck von  $2,5 \times 6$  mm begrenzt. Nach der ersten Streuung gelangen die Protonen durch ein  $18,0 \text{ mg/cm}^2$  dickes Tantalfenster in den mit He gefüllten Analysator, wo die beiden  $9 \times 9$  mm Blenden A den Strahl begrenzen.

Im Volumenteil *B* an He gestreute Protonen können durch zwei  $2 \times 9$  mm Blenden *C* die Photoplatten erreichen. Da die Polarisation  $P_1$  aus der Links-Rechtsasymmetrie dieser zweiten Streuung bestimmt wird, ist es wesentlich, dass in der Heliumkammer selbst keine geometrischen Asymmetrien vorhanden sind. Dies wurde zunächst mit mechanischen Messmethoden auf 0,02 mm sichergestellt. Später ausgeführte Testmessungen, auf die im Abschnitt II, A, 4 eingegangen wird, haben dieses Resultat bestätigt.

Um im Hinblick auf den statistischen Fehler eine brauchbare Anzahl von Spuren auf den Photoplatten zu erhalten, sind je nach Winkel, Bestrahlungen von 6 bis 15  $\mu\text{Ah}$  notwendig, die bei einer mittleren Strahlintensität von 0,8  $\mu\text{A}$ , Bestrahlungszeiten von 8–20 Stunden ergeben. Aus diesem Grunde wurden zwei identische Analysatoren hergestellt, so dass die Untersuchung von zwei verschiedenen Winkeln gleichzeitig möglich ist. Die Kammern können zwischen  $30^\circ$  und  $150^\circ$  in Winkelabständen von  $15^\circ$  an die Streukammer angeflanscht werden.

Zur Füllung der Analysatoren wird Medizinalhelium verwendet, dessen Reinheit nach den Angaben der Hersteller 99,9% beträgt. Bei allen Messungen wird mit einem Druck in der Umgebung von 4 Ata gearbeitet. Als Kernphotoplatten wurde anfänglich für einige Messungen der Typ Kodak NTA 100  $\mu$  verwendet, dann aber durchwegs Ilford E<sub>1</sub> 100  $\mu$ , weil dieser bedeutend weniger Untergrund-Körnung aufweist. Die Platten wurden einer Temperaturzyklus-Entwicklung in ID 19 unterworfen.

Die Targets bestanden grösstenteils aus dünnen Folien. Bei Al, Ti und Au konnten kommerzielle Folien verwendet werden. Für Mg und V wurden diese durch Aufdampfen von NaCl auf eine Glasplatte und anschliessend mit dem gewünschten Material (Mg, V) im Hochvakuum erhalten<sup>25</sup>). Die Metallschichten können alsdann in einem warmen Wasserbad abgelöst werden. Da mit diesem Verfahren bei Vanadium nur relativ dünne Schichten, maximal 0,5 mg/cm<sup>2</sup> erhalten werden können, fanden zur Messung grosser Winkel aus Intensitätsgründen dicke Targets Verwendung. Bei der Auswertung werden aber nur Streuungen, die in einer Schichtdicke von ca. 3 mg/cm<sup>2</sup> stattfinden, betrachtet. Dies ergibt sich durch Auswahl der Spuren entsprechender Länge. Dieselbe Methode hat sich auch für die Testmessungen an Kohlenstoff bewährt. Die nachfolgende Tabelle gibt Aufschluss über die verwendeten Targets.

Die Justierung der Heliumstreukammern bezüglich der Target erfolgt mittels optischer Methoden. Eine fehlerhafte Geometrie der Analysatoren ist nicht der einzige Grund, der eine Asymmetrie in der Bestrahlung der Photoplatten hervorrufen kann. Ein derartiger Effekt tritt auch auf, wenn die Achse des Protonenstrahls und diejenige des Analysators die Target nicht im selben Punkt durchstossen. Die Target kann aber in der

Element	Dicke der Target	Herstellung	Ausgeführte Messungen
Au . . .	0,2 mg/cm <sup>2</sup>	Kommerzielle Folien	Alle Testmessungen der Polarisationsexperimente.
	2,42 mg/cm <sup>2</sup>	Kommerzielle Folien	Messung des differentiellen Wirkungsquerschnittes elasti- sch gestreuter Protonen.
C . . .	25 mg/cm <sup>2</sup>	Durch Schleifen einer Graphitscheibe	Messung der Polarisation unter 90° und 150°.
Mg . .	3,0 mg/cm <sup>2</sup>	Bedampfen einer Glas- platte mit Kochsalz, anschliessend mit Mg. Ablösen der Mg-Schicht in einem warmen Wasserbad	Alle Polarisationsmessungen. Messung des differentiellen Wirkungsquerschnittes.
Al . . .	2,58 mg/cm <sup>2</sup>	Kommerzielle Folien aus Reinaluminium	Messung des differentiellen Wirkungsquerschnittes
	1,35 mg/cm <sup>2</sup>	Kommerzielle Folien aus Reinaluminium	Alle Polarisationsmessungen
Ti . . .	0,5 mg/cm <sup>2</sup>	Mit Hilfe derselben Methode wie bei Mg	Messung der Polarisation unter den Winkeln 45°, 60°, 75°, 105°
	0,5 mm	Kommerzielles Blech	Messung der Polarisation unter den Winkeln 90°, 120°, 135°, 150°
	2,13 mg/cm <sup>2</sup>	Kommerzielle Folien	Messung des differentiellen Wirkungsquerschnittes
V . . .	0,3 mg/cm <sup>2</sup>	Mit Hilfe derselben Methode wie bei Mg	Alle Polarisationsmessungen

Richtung des Protonenstrahls verschoben werden, wobei der Schnittpunkt Beam-Target auf dieser festbleibt, während sich der Durchstoss- punkt mit der Achse des Analysators in der Targetebene verschiebt. Der- gestalt lassen sich die beiden Punkte zur Deckung bringen. Um diese Einstellung zu finden, wird das Tantalfenster entfernt und in das Ver- bindungsrohr Analysator-Kammer ein mit Fadenkreuzen versehenes, genau passendes Plexiglasrohr eingesetzt, dessen vorderes Ende bis auf 2 cm an die Target heranreicht. Der Analysator erhält in diesem Fall einen Plexiglasdeckel und an Stelle der Target wird eine dünne Quarz- scheibe als Leuchtindikator für den Protonenstrahl eingesetzt, worauf die

ganze Anordnung durch Verschieben von Blende und Target justiert werden kann. Die Zentrierung der bestrahlten Targetfläche bezüglich der Analysatorachse ist besser als 0,5 mm. Ausführliche Rechnungen haben gezeigt, dass der daraus resultierende Fehler für  $R$  weniger als 1,5% beträgt, was in jedem Falle kleiner ist, als der jeweilige statistische Fehler. Aus den Testmessungen geht hervor, dass der angeführte Fehler wirklich eine obere Grenze darstellt.

### 3. Die Auswertung

Die Anwendung von Photoplatten bietet insbesondere im Hinblick auf die geringe Zahl von Ereignissen und damit auf die Empfindlichkeit des Experimentes hinsichtlich des Untergrundes mehrere Vorteile: Die verwendeten Platten sprechen auf  $\gamma$ -Quanten und Elektronen gar nicht an und die registrierten Protonen können bezüglich ihrer Energie und der Richtung, die durch die geometrische Anordnung des Experimentes gegeben ist, ausgewählt werden. Damit eine Spur als ein uns interessierendes Ereignis betrachtet wird, muss sie folgenden Kriterien genügen:

1. Sie muss an der Plattenoberfläche beginnen.
2. Ihre Richtung muss mit der geometrischen Anordnung des Experimentes verträglich sein.
3. Die Länge der Spur muss der berechneten Protonenenergie entsprechen.

Als Untergrund kommen Neutronen in Frage, die bei  $(p, n)$ -Prozessen entstehen können und sich in Form von Rückstossprotonen in den Kernphotoplatten bemerkbar machen. Um die Grösse dieses Effektes zu prüfen, wurden die Analysatoren in derselben Anordnung wie bei den Polarisationsmessungen bestrahlt, wobei ein 0,5 mm dickes Aluminiumblech den direkten Eintritt von Protonen in die Heliumkammern verhinderte. Für Mg, Al und Ti, deren  $(p, n)$ -Schwellen über 4 MeV liegen, konnten praktisch keine Ereignisse, die den oben erwähnten Kriterien genügt hätten, registriert werden. Dagegen ergeben sich bei der Bestrahlung von V, dessen  $(p, n)$ -Schwelle bei 1,53 MeV liegt, eine grössere Zahl von Rückstoss Spuren. Durch eine massive Paraffin-Cd-Abschirmung zwischen der Target und den Photoplatten gelingt es aber, den Neutronenuntergrund so zu vermindern, dass die Anzahl der von Rückstossprotonen herrührenden Spuren vernachlässigt werden kann.

Die Energie-Reichweite Beziehung für 1–4 MeV-Protonen in Ilford E1-Platten ist nicht sehr genau bekannt und kann zudem durch die Schrumpfung, welche der Entwicklungsprozess hervorruft, noch von diesem abhängig sein. Deshalb wurde die Spurenlänge in Funktion der Protonenenergie experimentell bestimmt. An einer Goldfolie von 0,2 mg/cm<sup>2</sup> Dicke elastisch unter einem Winkel von 30° gestreute Protonen treffen eine

Kernphotoplatte unter demselben Winkel, wie im Doppelstreuexperiment. Indem der Primärstrahl Aluminiumfolien verschiedener Dicke durchdringen muss, wird die Energie der Protonen variiert. Das in Figur 4 dar-

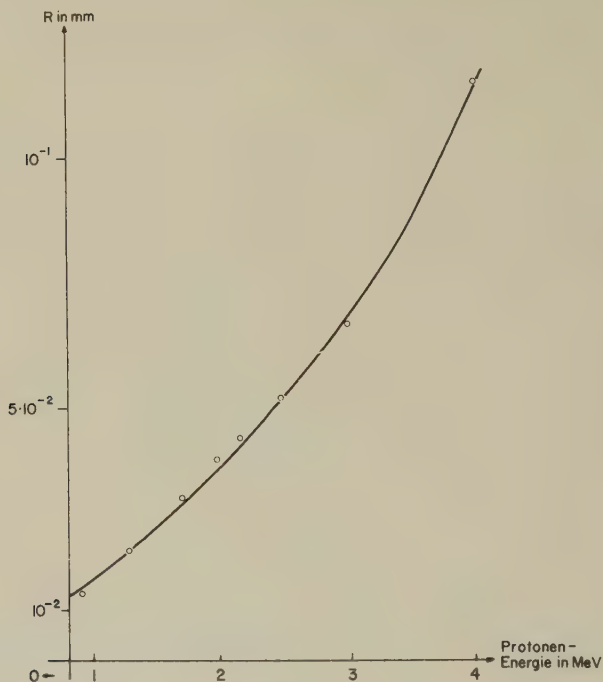


Fig. 4

Energie-Reichweitebeziehung von Protonen in Ilford E1-Emulsionen

gestellte Resultat dieser Messungen ist in guter Übereinstimmung mit den von VIGNERON<sup>26)</sup> in Ilford C2-Emulsionen gefundenen Reichweiten.

Die Betrachtung der Platten geschieht mit einem Ölimmersionsmikroskop und es wird eine Plattenfläche von  $20 \times 6$  mm ausgewertet. Die Auszählung erfolgt in 30 Linien senkrecht zur Richtung der Spuren, wobei die erwähnten Kriterien Anwendung finden und die Spuren mittels eines Netzokulars in sechs verschiedene Grössenklassen eingeteilt werden. Je 10 Linien werden zu einem Streifen zusammengefasst und die mittlere Energie der registrierten Protonen bestimmt. Daraus kann die Energie unmittelbar vor der zweiten Streuung ermittelt werden, wobei die Abbremsung im Helium und der Energieverlust als Folge des Streuprozesses berücksichtigt werden muss. Diese Energie kann auch aus der Primärenergie der Protonen unter Berücksichtigung der Energieverluste bei der



ersten Streuung und durch Abbremsung in der Target, Ta-Fenster und He, berechnet werden. Die beiden Resultate stimmen stets innerhalb von 3% überein. Der Winkel der zweiten Streuung variiert bei einem Streifen um  $4^\circ$ . Damit sind die Parameter zur Bestimmung von  $P_2(\theta)$  aus Figur 2 genügend genau bekannt.

Das Verhältnis  $R$  der Anzahl vorwärtsgestreuter Protonen zu rückwärtsgestreuten bedarf vor der Berechnung von  $P_1$  noch einer Korrektur, die von der Winkelverteilung der ersten Streuung herrührt, indem das Volumen  $B$  (Fig. 3) nicht symmetrisch bestrahlt wird. Die Asymmetrie der Bestrahlung kann direkt den gemessenen Winkelverteilungen (Fig. 11 bis 13) entnommen werden. Daraus lässt sich im Prinzip der Korrekturfaktor für jeden Winkel exakt berechnen, was aber auf langwierige numerische Raumwinkelintegrale führt. Der Korrekturfaktor kann aber auch experimentell durch Messung einer reinen Coulomb-Streuung, welche in diesem Energiebereich keine Polarisierungseffekte zur Folge hat, bestimmt werden. Die gemessene Asymmetrie  $R$  entspricht dann gerade der Korrektur. Ein derartiges Experiment wurde mit Gold für einen Streuwinkel von  $45^\circ$  ausgeführt. Der gemessene und der abgeschätzte Korrekturfaktor stimmen grössenordnungsmässig überein und aus dem gemessenen Wert kann die Korrektur für eine beliebige Winkelverteilung relativ genau angegeben werden. Sie ist bei allen Experimenten nur für Winkel kleiner als  $75^\circ$  von Bedeutung und beträgt maximal 8%.

#### 4. Testmessungen a) Symmetrieprüfung

Aus der Beziehung (2) erkennt man sofort, dass für den Fall, wo  $n_2$  senkrecht auf  $n_1$  steht,  $R$  den Wert 1 annimmt, was aussagt, dass bei einem Streuexperiment mit einem unpolarisierten Strahl der Polarisationsvektor der gestreuten Teilchen die Richtung der Normalen zur Streuebene besitzt. Diese Tatsache wurde ausgenützt, um die Symmetrie der Kammern und die Genauigkeit der Justierungsmethode zu prüfen. Die Analysatoren wurden unter  $45^\circ$  zum einfallenden Protonenstrahl so angeordnet, dass die beiden Photoplatten symmetrisch zur Streuebene standen. Die erste Streuung fand an einer Goldfolie statt. In der nachfolgenden Tabelle sind die Resultate dieser Messungen zusammengestellt,  $A$  und  $B$  bezeichnen die linke, beziehungsweise rechte Symmetrieseite der Analysatoren.

Analysator 1

		Anzahl Spuren	$R$		Anzahl Spuren	$R$
Oben	$A$	1608	0,99	$B$	859	0,99
Unten	$B$	1625		$A$	862	

Analysator 2

		Anzahl Spuren	$R$		Anzahl Spuren	$R$
Oben	$A$	5954	0,99	$B$	2609	1,03
Unten	$B$	6009		$A$	2521	

Innerhalb des statistischen Fehlers ist keine Asymmetrie festzustellen.

### b) Polarisation an Kohlenstoff

Um die Mess- und Auswertemethode der Experimente zu prüfen, wurde die Polarisation elastisch an Kohlenstoff gestreuter Protonen gemessen. Diese ist aus der Phasenanalyse verschiedener Streuexperimente bekannt<sup>27)28)</sup> und in der nachfolgenden Tabelle sind die experimentellen Resultate mit den aus der Phasenanalyse sich ergebenden Werten verglichen.

$E_{\text{Prot.}}$	Streuwinkel im Schwerpunktsystem $\Theta_{Cm}$	$P_1, \text{exp.}$	$P_1, \text{Phasenan.}$
3,8 MeV	95° 152,5°	$-0,27 \pm 0,06$ $-0,20 \pm 0,07$	$-0,32$ $-0,19$

## B. Bestimmung des differentiellen Wirkungsquerschnittes elastisch und inelastisch gestreuter Protonen

Figur 5 zeigt die experimentelle Anordnung. In den verschiebbaren Blendenhalter wird ein Bleikollimator von 3 mm Durchmesser eingesetzt. Der Targethalter kann 6 verschiedene Targets aufnehmen, die sich wahlweise in den Protonenstrahl einschieben lassen. Die Justierung erfolgt mit Hilfe von zwei dünnen, mit Fadenkreuzen versehenen Leuchtstofftargets, die im Abstand von 10 cm befestigt sind. Auf diese Weise ist es möglich, die 0°-Richtung der Kammer mit dem Protonenstrahl zur Deckung zu bringen. Sowohl der Targethalter, wie auch die Detektoren mit den Kollimatoren, sind am Kammerdeckel befestigt und bezüglich dessen Achse zentriert. Zur Kontrolle der Zentrierung können an Stelle der Detektoren Stahlspitzen, die bis ins Kammerzentrum reichen, eingesetzt werden. Die Öffnung der Kollimatoren vor den Detektoren beträgt 3 mm, was einem Winkelauflösungsvermögen von 1° entspricht.

Als Szintillatoren finden CsJ(Tl)-Harshaw-Kristalle von 1,8 mm Dicke und 25 mm Durchmesser Verwendung. Die Kristalle befinden sich in kurzen Plexiglaslichtleitern. Diese sind mit Araldit in die Bohrung von flachen Antikorodalzylindern eingekittet, welche durch O-Ringe so ab-

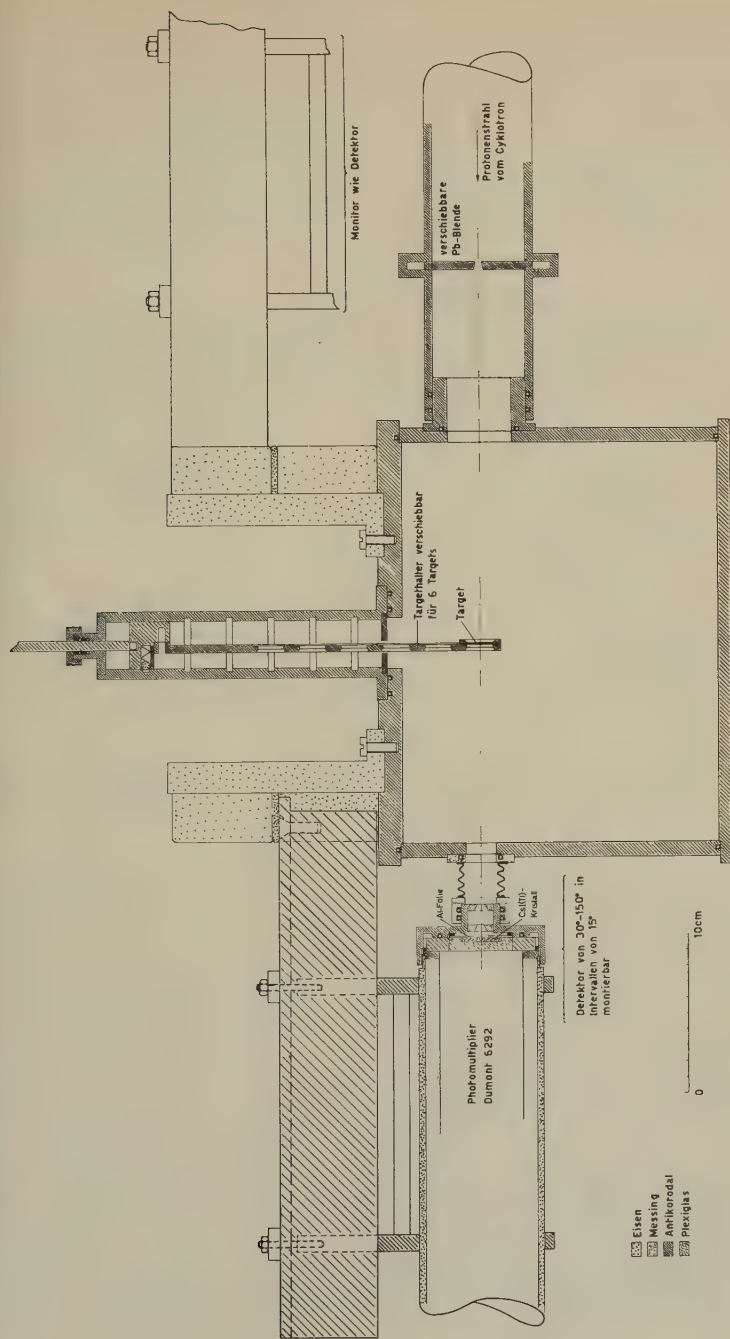


Fig. 5  
Messapparat für die Streuexperimente

gedichtet werden, dass sich die CsJ-Szintillatoren im Vakuum, die Dumont 6292 Multiplier unter gewöhnlichem Atmosphärendruck befinden. Die Lichtleiter sind zur Erhöhung des Reflexionsvermögens von MgO umgeben und eine  $1,2 \text{ mg/cm}^2$  dicke Al-Folie vor Kristallen und Licht-

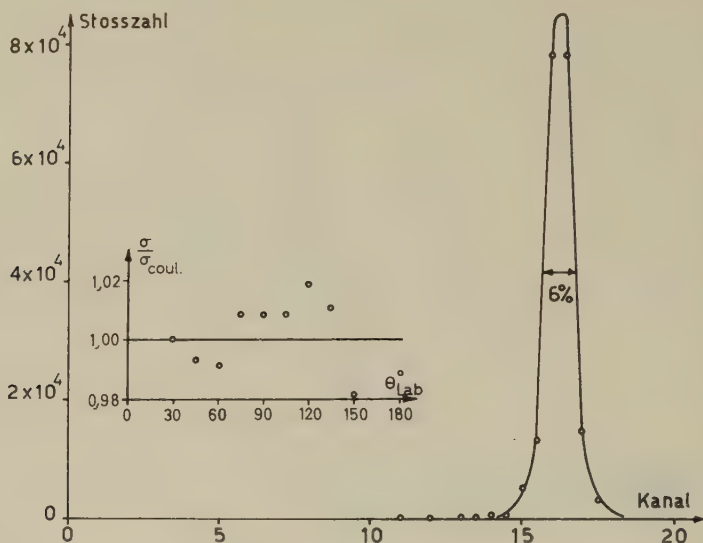


Fig. 6

Impulsspektrum der an Au gestreuten Protonen für  $\Theta_{\text{Lab.}} = 90^\circ$ . Die kleine Figur zeigt das Verhältnis des gemessenen, zum Coulombschen Wirkungsquerschnitt in Funktion des Streuwinkels. Für  $\Theta = 30^\circ$  ist  $\sigma/\sigma_{\text{Coul.}}$  auf 1 normiert

leiten verhindert das Eindringen von Licht. Der Detektor ist an einen 20-Kanal Impulsanalysator angeschlossen<sup>38</sup>, der durch Verschieben des Impulsspektrums um  $1/4$ -,  $1/2$ -,  $3/4$ -Kanäle die Aufnahme eines Spektrums mit 80 Punkten erlaubt. Die Impulse des Monitors werden einem 1-Kanal Analysator zugeführt. Das Auflösungsvermögen der Detektoren wurde mit einer  $\text{Po}^{210}\alpha$ -Quelle bestimmt und beträgt 5%. Für Protonen erwartet man demnach einen etwas kleineren Wert. Durch die Experimentelle Anordnung bei den Streumessungen erhalten aber die Protonen ein Energiestraggling, welches die Linien des Spektrums verbreitert. Für das Spektrum der an Gold unter  $90^\circ$  gestreuten Protonen seien die Effekte im folgenden kurz diskutiert. Die Energieunschärfe des Primärstrahles beträgt 40 keV, d. h. 1%. Die effektive Targetdicke ist  $3,4 \text{ mg/cm}^2$ , die Dicke der Al-Folie vor dem Kristall  $1,2 \text{ mg/cm}^2$ . Daraus ergibt sich ein maximales Energiestraggling von 20 keV, bzw. 0,5%. Das Auflösungsvermögen müsste besser als 5,2% sein. Wie Figur 6 zeigt, ist es schlechter als man nach dieser Abschätzung erwartet und beträgt 6%. Es scheint, dass der

Grund hierfür beim CsJ(Tl)-Kristall liegt, in welchem nach einiger Zeit Trübungen festzustellen waren. Ebenfalls in Figur 6 ist für Gold das Verhältnis  $\sigma/\sigma_{\text{Coul.}}$  des gemessenen differentiellen, zum Coulombschen Wirkungsquerschnitt dargestellt. Es ist für  $\Theta = 30^\circ$  auf 1 normiert. Die maximalen Abweichungen betragen  $\pm 1,8\%$ , die ein Mass für die Genauigkeit der Winkelverteilung elastisch gestreuter Protonen geben. Für alle Messungen wurden die Stosszahlen so gewählt, dass der statistische Fehler weniger als 1% beträgt.

### III. Resultate

Die gemessenen Polarisationen elastisch an Mg, Al, Ti und V gestreuter Protonen sind in den Figuren 7 bis 10 zusammen mit den statistischen Fehlern in Funktion des Streuwinkels dargestellt.

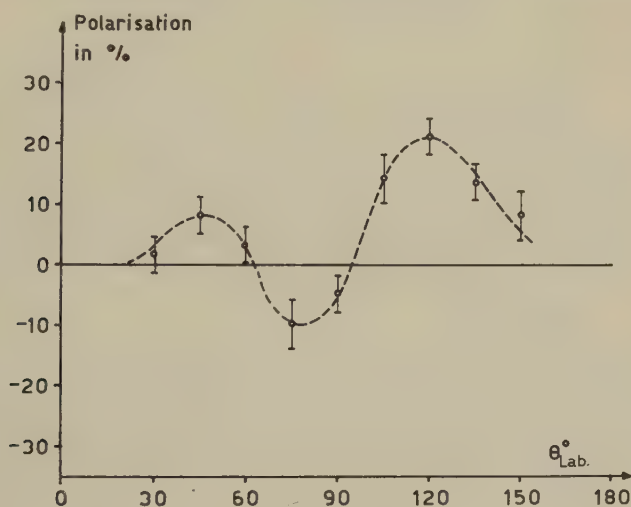


Fig. 7

Polarisation elastisch an Mg gestreuter Protonen in Funktion des Streuwinkels.  
Protonenenergie  $\bar{E} = 3,9 \text{ MeV}$

Die Messpunkte sind durch eine gestrichelte Kurve miteinander verbunden

Die Unsicherheit, die sich aus der Ungenauigkeit der Justierung des Protonenstrahles ergibt, wurde im experimentellen Teil abgeschätzt und ist von der Grössenordnung  $P_2 = 0,02 = 2\%$ .

Es kann nicht ganz ausgeschlossen werden, dass bei der Ermittlung von  $P_2$  systematische Fehler gemacht werden. Die Energieunschärfe der Protonen vor der zweiten Streuung beträgt bis zu 300 keV bei einer Energie von 2–2,6 MeV und der Streuwinkel variiert von  $65$ – $75^\circ$ . Da sich in diesem Gebiet die Polarisation  $P_2(\Theta)$  von He ziemlich stark ändert, können die für die Berechnung von  $P_1$  verwendeten Mittelwerte von  $P_2$



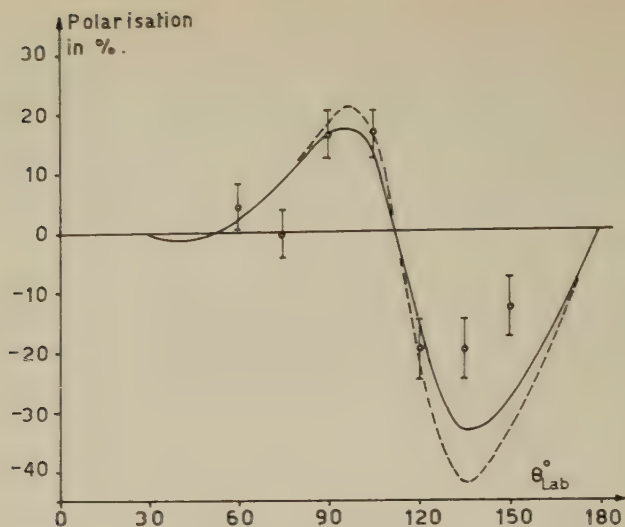


Fig. 8

Polarisation elastisch an Al gestreuter Protonen.  $\bar{E} = 3.95$  MeV. Die gestrichelte Kurve entspricht den Vorhersagen des optischen Modells (Bjorklund). Die ausgezogene Kurve ist für compoundelastische Streuung korrigiert mit einem Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{Ce} = 4,03$  mb/ster.

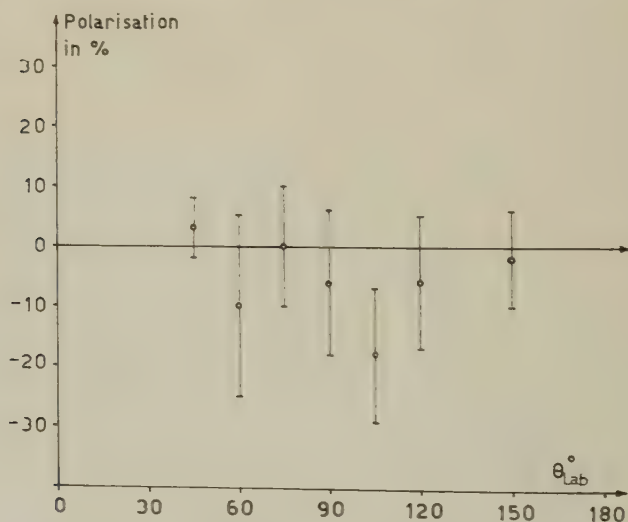


Fig. 9

Polarisation elastisch an Ti gestreuter Protonen in Funktion des Streuwinkels.  
 $\bar{E} = 3,95$  MeV

systematische Fehler aufweisen. Solche Abweichungen beeinflussen den allgemeinen Verlauf der Polarisation in Funktion des Streuwinkels nicht, sondern haben die Multiplikation der angegebenen Polarisation mit einem fast konstanten Faktor zur Folge.

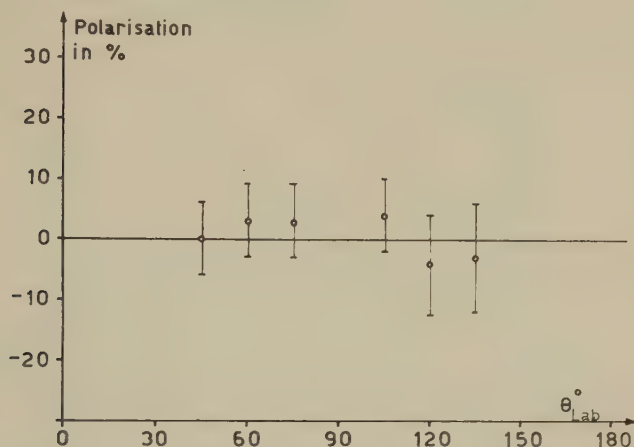


Fig. 10

Polarisation elastisch an V gestreuter Protonen in Funktion des Streuwinkels.  
 $\bar{E} = 3,9 \text{ MeV}$

Die Messungen an V und Ti weisen bedeutend grössere Unsicherheiten auf. Mit den zur Verfügung stehenden dünnen Folien ergeben sich selbst mit 30stündigen Bestrahlungen noch grosse statistische Fehler. Ausserdem fällt der Wirkungsquerschnitt bei diesen Elementen für grosse Winkel viel stärker ab, als dies bei Al und Mg der Fall ist. Deshalb ergaben sich bei den Polarisationsmessungen unter grossen Winkeln trotz der Verwendung von dicken Targets relativ wenige Ereignisse. Dabei müssen in diesem Fall die Spuren der richtigen Länge aus einer kontinuierlichen Verteilung aussortiert werden, was auf zusätzliche Ungenauigkeiten führt.

Die Winkelverteilungen elastisch an Mg, Al und Ti gestreuter Protonen sowie die Verhältnisse  $\sigma/\sigma_{\text{Coul.}}$  der gemessenen zu den Coulombschen differentiellen Wirkungsquerschnitte finden sich in den Figuren 11 bis 13. Da es sich nur um Relativmessungen handelt, wurde  $\sigma/\sigma_{\text{Coul.}}$  beim kleinsten untersuchten Winkel, nämlich  $30^{\circ}$  auf 1 normiert, was insbesondere bei Mg nicht unbedingt den Tatsachen entsprechen muss. Der statistische Fehler ist hier überall kleiner als 3%, wogegen in der Bestimmung der Strahlrichtung und damit des Streuwinkels Unsicherheiten von  $\pm 1,5^{\circ}$  auftreten können. Diese Messungen wurden vor allem ausgeführt, um die schon erwähnten, bei den Polarisationsexperimenten notwendigen Kor-

## Anmerkung zu den Figuren 11 bis 13

Für die Elemente Mg, Al und Ti ist jeweils in der oberen Figur der differentielle Wirkungsquerschnitt  $\sigma$  elastisch gestreuter 4 MeV-Protonen in logarithmischem Maßstab und beliebigen Einheiten in Funktion des Streuwinkels  $\Theta_{\text{Lab.}}$  aufgetragen. Die untere Figur stellt in linearem Maßstab das Verhältnis  $\sigma/\sigma_{\text{Coul.}}$  des gemessenen zum Coulombschen differentiellen Wirkungsquerschnitt in Funktion des Streuwinkels  $\Theta_{\text{Lab.}}$  dar. Dabei ist für  $\Theta_{\text{Lab.}} = 30^\circ$  auf 1 normiert.

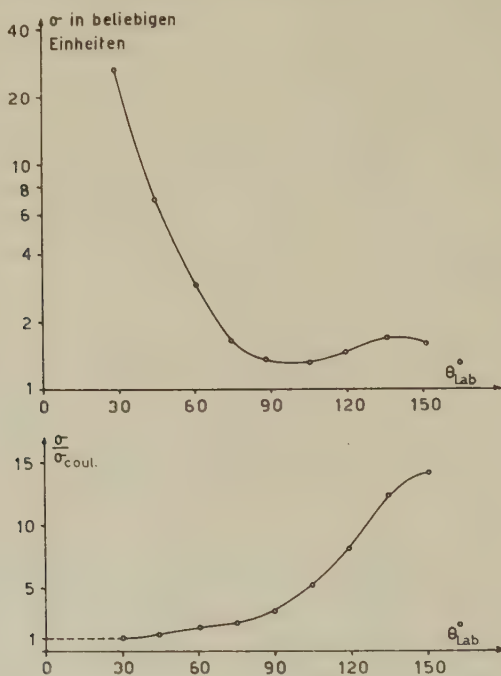


Fig. 11  
Magnesium

rekturen zu berechnen. Gleichzeitig ergeben sich zusätzliche Informationen über den Streuprozess.

Um den Einfluss inelastisch gestreuter Protonen auf die Polarisationsmessungen zu untersuchen, wurden unter allen Streuwinkeln die Protonenspektren gemessen. Einige davon sind in den Figuren 14 bis 17 dargestellt.

Die Spitzen der inelastisch gestreuten Protonen können bekannten angeregten Zuständen der untersuchten Kerne zugeordnet werden. Die Anzahl der inelastisch gestreuten Protonen beträgt höchstens einige Prozent der elastischen. Protonen, welche beim inelastischen Streuprozess mehr als 0,8 MeV Energie verloren haben, werden bei den Polarisations-

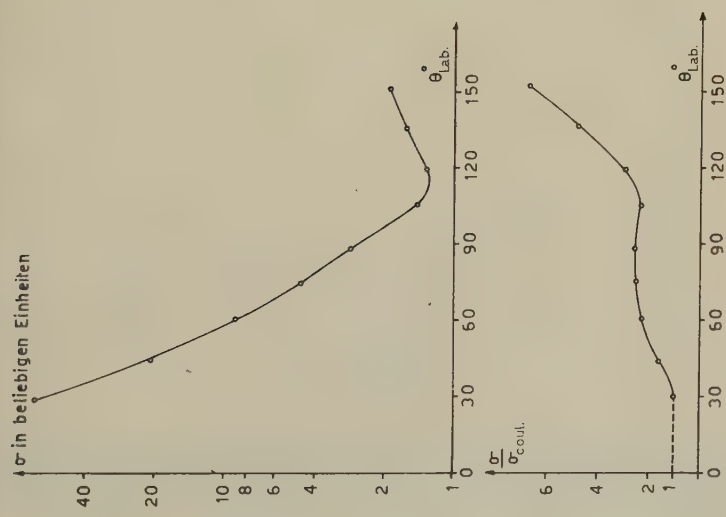


Fig. 12  
Aluminium

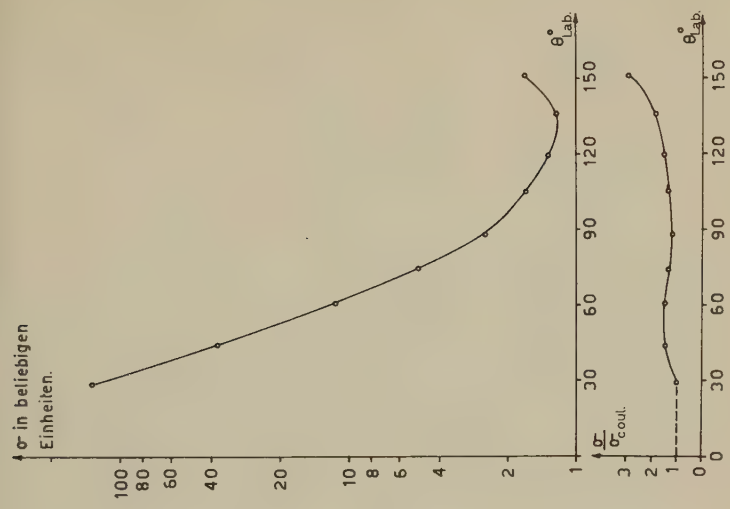


Fig. 13  
Titan

Anmerkung zu den Figuren 14 bis 17

Für Mg, Al, Ti und V sind die Spektren der gestreuten 4 MeV-Protonen dargestellt. Die Anregungsenergien sind oberhalb der Spitzen in MeV angegeben.

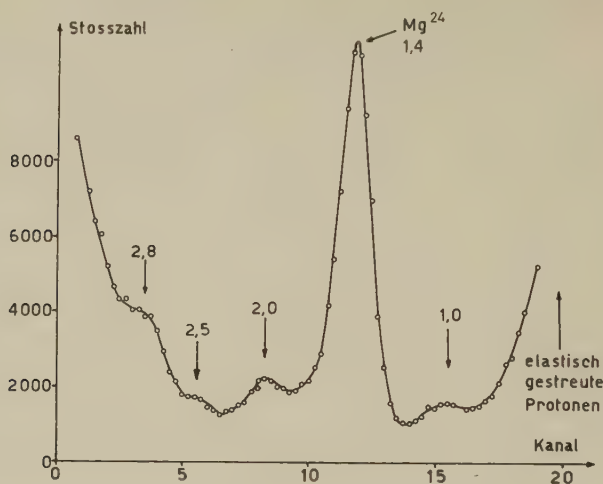


Fig. 14  
Magnesium  $\Theta = 74^\circ$

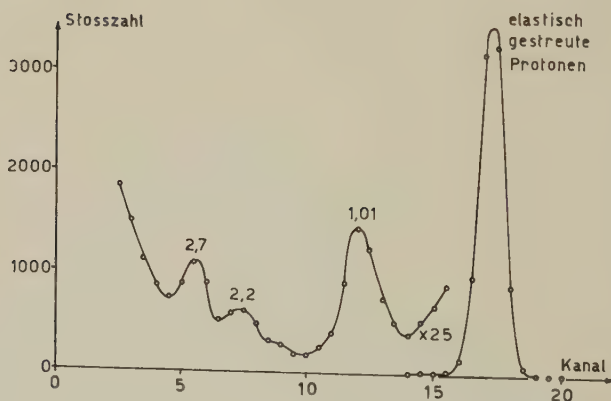


Fig. 15  
Aluminium  $\Theta = 45^\circ$

experimenten eindeutig von den elastischen getrennt. Aus beidem erkennt man, dass die Polarisationsexperimente durch inelastische Protonen nicht beeinflusst werden.

Als weiteres Resultat dieser Messungen ergeben sich noch die differentiellen Wirkungsquerschnitte einiger inelastischer Protonengruppen. Ent-



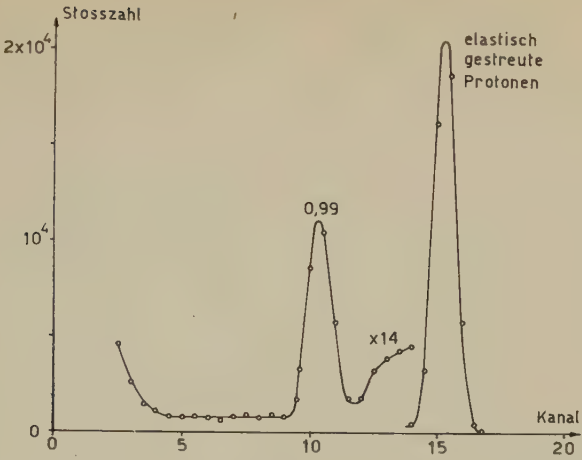


Fig. 16  
Titan  $\Theta = 90^\circ$

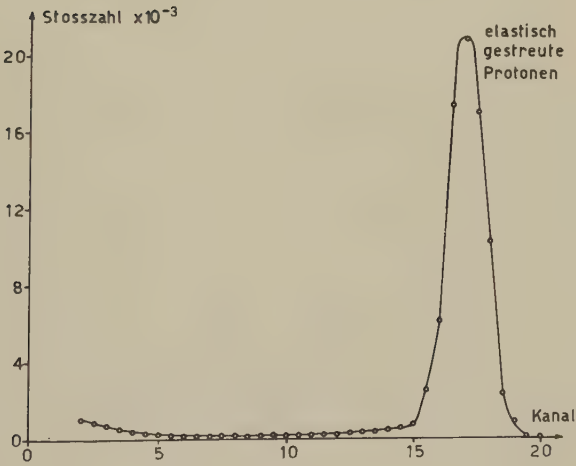


Fig. 17  
Vanadium  $\Theta = 104^\circ$

sprechend der geringen Intensität sind hier die statistischen Fehler bedeutend grösser und mit den Messpunkten zusammen in den Figuren 18 bis 20 eingetragen. Auch hier handelt es sich nur um den relativen Verlauf der Wirkungsquerschnitte in Funktion des Streuwinkels und nicht um Absolutmessungen.

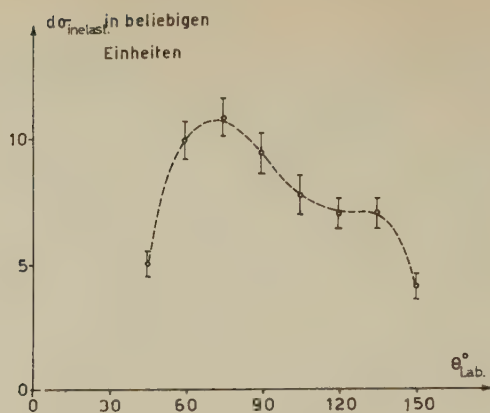


Fig. 18

Winkelverteilung von inelastisch an Mg gestreuten 4 MeV-Protonen.  
Die Anregungsenergie beträgt 1,37 MeV

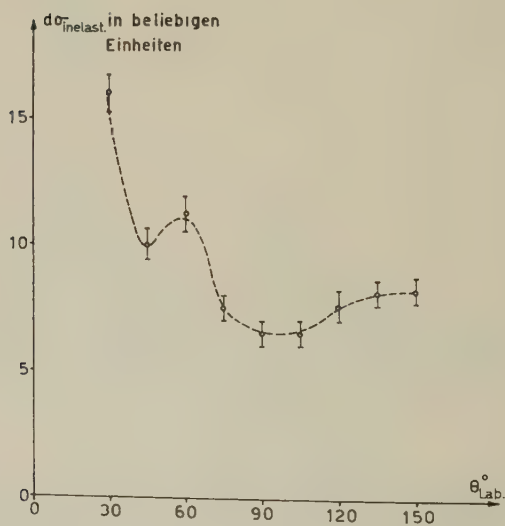


Fig. 19

Winkelverteilung von inelastisch an Al gestreuten 4 MeV-Protonen.  
Die Anregungsenergie beträgt 1,01 MeV

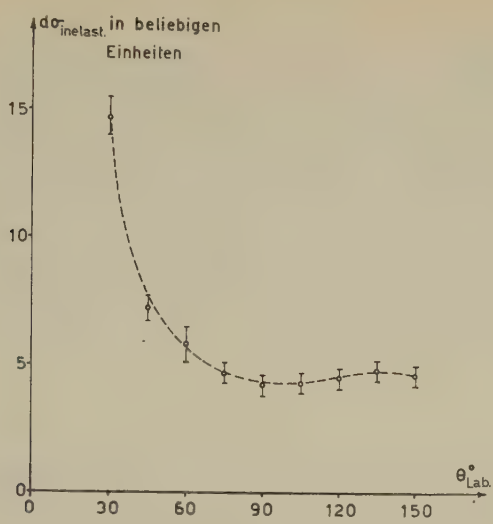


Fig. 20

Winkelverteilung von inelastisch an Ti gestreuten 4 MeV-Protonen.  
Die Anregungsenergie betragt 0,99 MeV

IV. Diskussion

1. Elastische Streuung und Polarisation

Die vorliegenden Polarisations- und Streumessungen konnen mit den Vorhersagen des optischen Modells verglichen werden und lassen einige Schlusse bezuglich des optischen Potentials zu. Die differentiellen Wirkungsquerschnitte elastisch gestreuter Neutronen und Protonen, wie sie von einem solchen Modell zu erwarten sind, wurden schon fur verschiedene Teilchenenergien und Potentialformen berechnet. Eine grosse Zahl von Messungen konnte mit Hilfe solcher Rechnungen gut interpretiert werden. Eine umfassende Untersuchung und Zusammenstellung rechnerischer und experimenteller Daten von differentiellen Wirkungsquerschnitten und der Polarisation elastisch gestreuter Neutronen und Protonen stammt von BJORKLUND und FERNBACH<sup>1)</sup>. Der Realanteil des von ihnen verwendeten Potentials entspricht dem bekannten Wood-Saxon Typ, der Imaginarteil beschreibt eine absorbierende Oberflache und der Spin-Bahnkopplungsterm wird in der Thomasform angeschrieben. Der Ausdruck fur das Potential lautet demnach:

$$\left. \begin{aligned} V = & \frac{V_{CR}(E)}{1 + \exp \frac{r + R_0}{a}} + i V_{CI} \exp - \left( \frac{r - R_0}{b} \right)^2 \\ & + [V_{SR}(E) + i V_{SI}(E)] \left( \frac{\hbar}{m_1 c} \right)^2 \frac{1}{r} \frac{d\rho(r)}{dr} \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{L}. \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

Dabei bedeutet  $V_{CR}(E)$  den Realanteil und  $V_{CI}(E)$  den Imaginärteil des zentralsymmetrischen Potentials.  $V_{SR}$  und  $V_{SI}$  stehen für den Realanteil und den Imaginärteil des Spin-Bahnkopplungstermes.  $R_0$  ist durch den Ausdruck  $R_0 = 1.25 A^{1/3} \cdot 10^{-13}$  cm gegeben und bezeichnet den Radius, bis zu welchem das Potential auf die Hälfte seines Maximalwertes abfällt. Der Potentialabfall an der Oberfläche wird ebenfalls durch eine Konstante, nämlich  $a = 0.68 \cdot 10^{-13}$  cm charakterisiert. Die Dicke der absorbierenden Oberfläche ist durch  $b$  gegeben und ist für Protonen von der Grössenordnung  $1.35 \cdot 10^{-13}$  cm. Der Wert für Neutronen ist etwas kleiner und beträgt etwa  $1 \cdot 10^{-13}$  cm.  $m_\pi$  bezeichnet die Mesonenmasse und es gilt noch die Definitionsgleichung

$$\varrho = \frac{1}{1 + \exp \frac{r - R_0}{a}} \quad (9)$$

$L$  und  $\sigma$  sind Bahndrehimpuls und Spin der einfallenden Teilchen. In Figur 21 ist die Form der einzelnen Potentialterme für Al dargestellt.

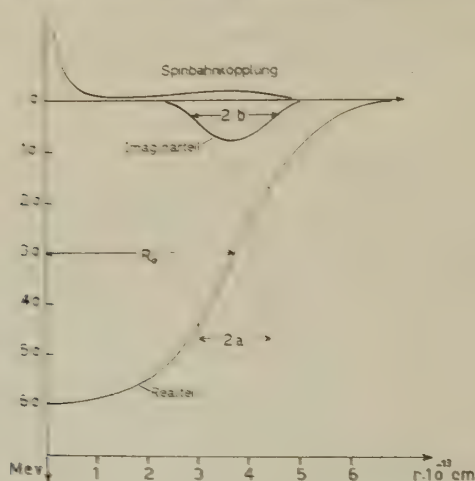


Fig. 21

Radialabhängigkeit der einzelnen Terme des Potentials  $\varrho$  für Aluminium

Die exakte Berechnung der differentiellen Wirkungsquerschnitte sowie der Polarisation in Funktion des Streuwinkels aus einem Potential der obigen Form kann nur numerisch durchgeführt werden. Die Bornsche Näherung ist in diesem Energiebereich nicht anwendbar.

Durch Variation der energieabhängigen Parameter  $V_{CR}(E)$ ,  $V_{CI}(E)$ ,  $V_{SR}(E)$  und  $V_{SI}(E)$  wurde jeweils die beste Anpassung an die experimentellen Daten gesucht. Ein solches Vorgehen ist allerdings der Kritik aus-

gesetzt, dass mit dieser Anzahl wählbarer Parameter auch eine grosse Variation von Resultaten interpretiert werden kann. Indessen zeigt es sich, dass die vier Parameter einen glatten Verlauf in Funktion der Energie aufweisen, wobei  $V_{CR}$  und  $V_{SR}$  bei Extrapolation der Teilchenenergie gegen Null Werte annehmen, die mit dem Schalenmodell verträglich sind. Figur 22 zeigt diese Energieabhängigkeit der Parameter. Die Neu-

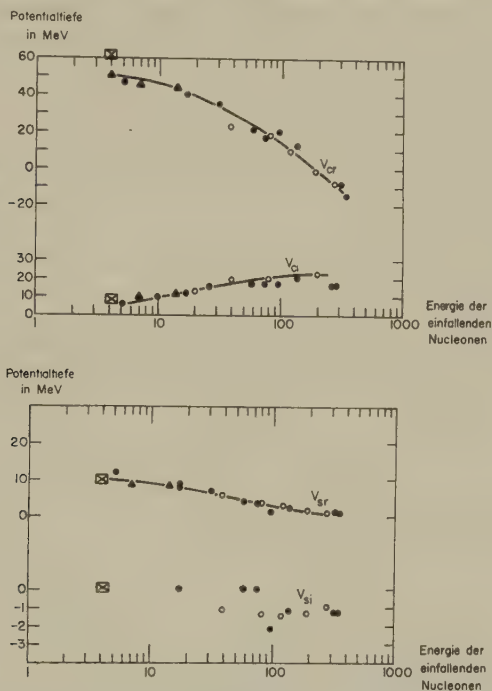


Fig. 22

Darstellung der Parameter  $V_{CR}$ ,  $V_{CI}$ ,  $V_{SR}$  und  $V_{SI}$  des Potentials 9 in Funktion der Energie der einfallenden Teilchen (BJORKLUND<sup>25</sup>). Die Kreise stammen von Protonen – und die Dreiecke von Neutronenexperimenten, während die Rechtecke aus den Resultaten der vorliegenden Polarisationsmessungen an Al folgen.

ronenpotentiale sind durch Dreiecke, die Protonenpotentiale durch Kreise gekennzeichnet. Daraus geht hervor, dass die Potentiale für Protonen im wesentlichen dieselben sind, wie für Neutronen. Nur die Breite der absorbierenden Oberfläche, die für Neutronen ungefähr  $10^{-13}$  cm beträgt, muss bei Protonen etwas grösser, nämlich  $1,35 \cdot 10^{-13}$  cm gewählt werden.

Über die Grösse der Spin-Bahnkopplungsterme ergeben sich aus der Analyse von Streumessungen keine eindeutigen Aussagen. Ein imaginärer spin-Bahnanteil wirkt z. B. bei Energien kleiner als 90 MeV praktisch



überhaupt nicht auf die differentiellen Wirkungsquerschnitte. Wie schon in der Einleitung erwähnt wurde, beeinflusst auch ein reelles Spinbahnkopplungspotential die differentiellen Wirkungsquerschnitte von elastisch gestreuten 14 MeV-Neutronen nur wenig<sup>6</sup>. Für die Protonenexperimente von DAYTON und SCHRANK<sup>8</sup>) hat dagegen BJORKLUND unter Berücksichtigung eines Spin-Bahnterms eine bedeutend bessere Übereinstimmung erzielen können, als MELKANOFF<sup>2b</sup> und Mitarbeiter, die ihre Rechnungen für ein Spinunabhängiges Potential ausgeführt haben. Die Resultate der beiden Rechnungen unterscheiden sich nur für Winkel, die grösser als 100° sind.

Bei Anwesenheit einer Spin-Bahnwechselwirkung werden aber vom optischen Modell beträchtliche Polarisationseffekte vorhergesagt<sup>4(1)</sup>, welche durch Experimente mit 17 MeV-Protonen<sup>9</sup> mindestens qualitativ gut bestätigt wurden.

Die vorliegenden Messungen zeigen, dass auch bei Teilchenenergien von 4 MeV noch beträchtliche Polarisationen auftreten. BJORKLUND und CAMPBELL haben im Falle von Al versucht, die Resultate mit Hilfe des optischen Modells zu interpretieren. Die beste Übereinstimmung konnte mit der folgenden Wahl der Parameter erhalten werden:

$$V_{CE} = 60.5 \text{ MeV}, \quad V_{SE} = 8.2 \text{ MeV}, \quad V_{DE} = 8.1 \text{ MeV}, \quad V_{SI} = 0.$$

Das Resultat der Rechnung ist zusammen mit den experimentellen Werten in der Figur 8 eingetragen.

Während der allgemeine Verlauf der Polarisation in Funktion des Streuwinkels, wie z. B. das Vorzeichen, die Orte der Maxima, Minima und der Nulldurchgänge durch die Theorie gut wiedergegeben wird, scheinen die theoretischen Absolutwerte insbesondere bei grossen Winkeln, zu gross auszufallen. Dies gilt auch dann noch, wenn compoundelastische Prozesse mit einem isotropen differentiellen Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{el} = 4.03$  mb/ster, in der Rechnung berücksichtigt werden. Allerdings braucht die compoundelastische Streuung nicht isotrop zu sein und die Korrektur kann demnach noch etwas grösser ausfallen. Ferner ist nicht sicher, wie gut die Bedingungen für die Anwendung des optischen Modells in diesem Energiegebiet erfüllt sind. Die Messungen von BLANFIED<sup>8</sup>) mit 17 MeV-Protonen weisen ähnliche Abweichungen von den Vorhersagen des optischen Modells auf.

In Figur 22 sind die gefundenen Werte für die Parameter eingetragen. Sie fügen sich gut in den Verlauf der Potentialparameter in Funktion der Energie, wie er durch die Analyse von andern Streu- und Polarisationsexperimenten gegeben wird, ein.

Für Magnesium sind die gemessenen Polarisationen von derselben Grössenordnung wie bei Al jedoch ist der Verlauf in Funktion des Streu-

wirklich nicht verwirklicht. Vergleiche mit dem Aussagen des optischen Modells liegen hier noch nicht vor. Vermutlich vermag aber das optische Modell die groÙe Variation zu den Resultaten von Al nicht wiederzugeben. Ebenso ist der Verlauf des differentiellen Wirkungsquerschnittes von Mg sehr verschieden von den Resultaten bei Al. Beide Tatsachen deuten darauf hin, daÙ hier die Bedingungen für die Anwendung des optischen Modells nicht mehr erfüllt sind. Mg<sup>24</sup> ist mit 78 % natürlichem Vorkommen das häufigste Isotop. Mit einer mittleren Protonenenergie von  $14 \pm 1.1$  MeV wird die Anregungsenergie im Zwischenkern ca. 6.2 MeV. Das Niveauschema<sup>24)</sup> des Zwischenkerns Al<sup>25</sup> zeigt, dass hier die Abstände zwischen den Zuständen von der gleichen Größenordnung sind, wie die Energieumstände der einfallenden Protonen. Gerasimovic und Mitarbeiter<sup>25)</sup> haben gefunden, dass schon bei Protonenenergien um 9.6 MeV die differentiellen Wirkungsquerschnitte noch eine starke Energieabhängigkeit aufweisen, die ein optisches Modell nicht wiedergeben könnte.

Die Experimente an V und Ti liefern infolge der geringen Messertiefen nur qualitative Aussagen. Die Polarisationen scheinen hier bedeutend kleiner zu sein, was aus dem Verlauf des differentiellen Wirkungsquerschnittes bei Ti gut verstanden werden kann. Die Abweichung der gemessenen Winkerverteilungen von der Coulombischen Wirkungsquerschnitt und hier entsprechend der hohen Ladungszahl, und kleiner als bei Mg und Al. Der Streuprozess wird vorwiegend durch die Coulombwechselwirkung bestimmt und demgemäß fallen auch die Polarisations-effekte kleiner aus.

## 2. Die inelastische Streuung

In den letzten Jahren sind eine Reihe von theoretischen und experimentellen Untersuchungen über die inelastische Streuung von Partikeln durchgeführt worden. Während früher angenommen wurde, dass Kernreaktionen und inelastische Streuprozesse hauptsächlich über die Bildung eines Zwischenkerns verlaufen, hat die Messung der Winkelverteilung inelastisch gestreuter Partikel gezeigt, dass auch direkte Wechselwirkungen zwischen dem einfallenden Teilchen und einem oder mehreren Nukleonen, z. B. an der Oberfläche des Targetkerns, eine wesentliche Rolle spielen<sup>26,27)</sup>. Es sei kurz an die charakteristischen Merkmale dieser beiden Mechanismen erinnert.

Die Winkelverteilung eines Prozesses, der über die Zwischenkernbildung stattfindet, ist symmetrisch um 90°. Dies gilt allerdings nur, wenn im Zwischenkern die Breiten der einzelnen Zustände groß und gegeneinander mittleren Niveausatzend ist, d. h. wenn die Voraussetzungen des optischen Modells erfüllt sind. Ist das nicht der Fall, so wird die Winkel-

verteilung die erwähnte Symmetrie nicht aufweisen, auch wenn sich der Prozess über die Bildung eines Zwischenkerns abspielt.

Bei Streuvorgängen, die über den Mechanismus der direkten Wechselwirkung vor sich gehen, weist der differentielle Wirkungsquerschnitt einen charakteristischen Verlauf in Funktion des Streuwinkels auf, mit ausgeprägten Maxima in der Vorwärtsrichtung. Unter ziemlich allgemeinen Voraussetzungen kann diese Winkelabhängigkeit in der Bornschen Näherung durch Glieder von der Form

$$|J_l(QR)|^2 \quad (10)$$

ausgedrückt werden, wobei  $J_l$  für die sphärische Besselfunktion der Ordnung  $l$  steht.  $R$  ist von der Grössenordnung des Kernradius, und es gilt  $Q = |\mathbf{k} - \mathbf{k}'|$  wenn  $\mathbf{k}$  und  $\mathbf{k}'$  die Fortpflanzungsvektoren der einfallenden und der gestreuten Welle sind. Bedeuten  $I_i$  und  $I_f$  die Spins des Targetkerns vor und nach der Streuung, so ist die Ordnung  $l$ , je nachdem ob die Paritäten der beiden Zustände übereinstimmen oder verschieden sind, auf alle geraden oder ungeraden Zahlen beschränkt, die der Bedingung  $|I_i - I_f| \leq l \leq |I_i + I_f|$  genügen. Durch BUTLER<sup>33)</sup> und andere wurde diese Theorie der direkten Wechselwirkung noch wesentlich verfeinert.

Die bei Ti, Mg und Al gefundenen Winkelabhängigkeiten inelastisch gestreuter Protonen erlauben einige qualitative Aussagen.

Bei Ti erscheint eine Gruppe, die der Anregung des 0,99 MeV  $2^+$ -Zustandes in Ti<sup>48</sup> entspricht. Die Winkelverteilung zeigt bei kleinen Winkeln einen starken Anstieg, was darauf hindeutet, dass hier direkte Wechselwirkungen beteiligt sind.

Die Spektren von an Mg gestreuten Protonen zeigen mehrere inelastische Gruppen. Am stärksten ist jene, die der Anregung des 1,37 MeV-Zustandes in Mg<sup>24</sup> entspricht. Die Winkelverteilung ist ebenfalls nicht symmetrisch um  $90^\circ$  und zeigt eine grosse Ähnlichkeit mit Messungen anderer Autoren<sup>31)34)35)36)</sup> im Energiebereich zwischen 7 und 12 MeV. Die Energieabhängigkeit scheint aber doch zu gross zu sein, um durch eine Beziehung von der Form (10) interpretiert werden zu können. Die inelastische Streuung über die Bildung eines Compoundkerns braucht hier auch nicht notwendigerweise die Symmetrie um  $90^\circ$  aufzuweisen, da, wie schon erwähnt, die statistischen Voraussetzungen über die Zustände im Zwischenkern nicht erfüllt sind. GREENLEES und Mitarbeiter<sup>31)34)</sup> glauben, dass der Prozess am ehesten durch eine Mischung von direkter Wechselwirkung und Compoundkernbildung erklärt werden kann.

Bei Al können die Protonen, die von der Anregung des  $3/2^+$ -Zustandes bei 1,01 MeV herrühren, nicht von denjenigen des  $1/2^+$ -Zustandes bei

0,842 MeV getrennt werden. Die gemessene Winkelverteilung entspricht daher der Summe dieser beiden Gruppen. Sie ist asymmetrisch um  $90^\circ$ , die Vorwärtsrichtung ist bevorzugt. F. des BARROS und Mitarbeiter<sup>37)</sup> können in ihren Experimenten die von den beiden Zuständen herrührenden Protonengruppen eindeutig trennen. Sie finden für die inelastische Streuung von 5 MeV-Protonen über den 1,01 MeV-Zustand ebenfalls Asymmetrie um  $90^\circ$ , aber ohne den Anstieg bei kleinen Winkeln, währenddem für die Streuung über den 0,84 MeV-Zustand keine Winkelverteilung angegeben wird.

Den Anstoss zu dieser Arbeit gab Herr K. ALDER, und wir sind ihm für viele Diskussionen und Anregungen zu Dank verpflichtet. Herrn Dr. FRANK BJORKLUND und Herrn Dr. GRAHAM CAMPBELL vom Radiation Laboratory der University of California sind wir sehr dankbar für die Ausführung der Rechnungen für Aluminium und die Erlaubnis, ihre Resultate in der vorliegenden Arbeit wiederzugeben. Einer von uns (J. S.) möchte an dieser Stelle Herrn Prof. Dr. P. SCHERRER, der ihm die Tätigkeit am Physikalischen Institut der ETH ermöglichte, seinen besten Dank aussprechen. Den Herren B. GOBBI, A. STEINER und M. POUCHON danken wir für ihre tatkräftige Mitarbeit bei den Messungen.

Diese Untersuchungen wurden durch einen Kredit der Kommission für Atomwissenschaften des Schweizerischen Nationalfonds ermöglicht.

### Literatur

- 1) F. BJORKLUND and S. FERNBACH, University of California Radiation Laboratory Report UCRL, 5028.
- 2) WOOD and SAXON, Phys. Rev. *95*, 577 (1954).
- 3) DAYTON and SCHRANK, Phys. Rev. *101*, 1358 (1957).
- 4) FESHBACH, PORTER, and WEISSKOPF, Phys. Rev. *96*, 448 (1954).
- 5) G. CULLER, S. FERNBACH, N. SHERMAN, Phys. Rev. *101*, 1047 (1956).
- 6) F. BJORKLUND and K. BROCKMAN, Phys. Rev. *110*, 163 (1958).
- 7) L. ROSEN and J. E. BROLLEY, JR., International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy A/Conf. 15/P/668.
- 8) K. W. BROCKMANN, JR., Phys. Rev. *110*, 163 (1958).
- 9) W. A. BLANPIED, Phys. Rev. *113*, 1099 (1959).
- 10) J. V. LEPORE, Phys. Rev. *79*, 137 (1950).
- 11) L. WOLFENSTEIN, Phys. Rev. *75*, 1664 (1949).
- 12) G. FREIER, E. LAMPI, W. SLEATER, and J. H. WILLIAMS, Phys. Rev. *75*, 1345 (1949).
- 13) W. E. KREGER, W. JENTSCHKE, and P. G. KRUGER, Phys. Rev. *93*, 837 (1954).
- 14) K. W. BROCKMANN, Phys. Rev. *102*, 392 (1956).
- 15) M. K. RUSSEL and J. H. WILLIAMS, Phys. Rev. *106*, 286 (1957).
- 16) C. L. CRITCHFIELD and D. C. DODDER, Phys. Rev. *76*, 602 (1949).
- 17) D. C. DODDER and J. L. GAMMEL, Phys. Rev. *88*, 520 (1952).
- 18) J. L. GAMMEL and R. M. THALER, Phys. Rev. *109*, 2041 (1958).
- 19) M. J. BRINKWORTH and B. ROSE, Nuov. Cim. *3*, I, 195 (1956).



- <sup>20)</sup> M. HEUSINKFELD and G. FREIER, *Phys. Rev.* **85**, 80 (1952).
- <sup>21)</sup> M. J. SCOTT and R. E. SEGEL, *Phys. Rev.* **100**, 1244A (1955); M. J. SCOTT, *Phys. Rev.* **110**, 1398 (1958).
- <sup>22)</sup> A. C. JUVELAND and W. JENTSCHKE, *Zeitschrift für Physik* **144**, 521 (1956).
- <sup>23)</sup> L. ROSEN and J. E. BROLLEY, *Phys. Rev.* **107**, 1454 (1957).
- <sup>24)</sup> M. MARTIN, P. MARMIER und J. de BOER, *Helv. Phys. Acta* **31**, 435 (1958).
- <sup>25)</sup> VON ANGERER, *Technische Kunstgriffe bei physikalischen Untersuchungen*, 9. Aufl. **100**, 106ff., Verlag Friedr. Vieweg und Sohn, Braunschweig.
- <sup>26)</sup> L. J. VIGNERON, *Journ. Phys. Rad.* **74**, 145 (1953).
- <sup>27)</sup> R. E. WARNER and W. P. ALFORD, University of Rochester NYO, 8576.
- <sup>28)</sup> C. W. REICH, G. C. PHILLIPS and J. L. RUSSEL, JR., *Phys. Rev.* **104**, 143 (1956).
- <sup>29)</sup> M. A. MELKANOFF, J. S. NODVIK, D. S. SAXON, and R. D. WOODS, *Phys. Rev.* **106**, 793 (1957).
- <sup>30)</sup> P. M. ENDT and C. M. BRAAMS, *Rev. of Mod. Phys.* **29**, 695 (1957).
- <sup>31)</sup> G. W. GREENLEES, B. C. HAYWOOD, L. G. KUO, and M. PETROVIC, *Proc. Phys. Soc.* **70A**, 331 (1957).
- <sup>32)</sup> N. AUSTERN, S. T. BUTLER, and H. Mc. MANUS *Phys. Rev.* **92**, 350 (1953).
- <sup>33)</sup> S. T. BUTLER, *Phys. Rev.* **106**, 272 (1957).
- <sup>34)</sup> G. W. GREENLEES, *Proc. Phys. Soc.* **69A**, 686 (1956).
- <sup>35)</sup> H. E. CONZETT, *Phys. Rev.* **105**, 1324 (1957).
- <sup>36)</sup> G. E. FISCHER, *Phys. Rev.* **96**, 704 (1954).
- <sup>37)</sup> F. DES BARROS, P. D. FORSYTH, A. A. JOFFE, and I. J. TAYLOR, *Proc. Phys. Soc.* **73A**, 793 (1959).
- <sup>38)</sup> H. GUHL, Dissertation ETH.



## The Temperature Dependence of the Polarizability of the Free Carriers in Germanium and Silicon\*

by Manuel Cardona\*\*, William Paul and Harvey Brooks  
 Harvard University

Division of Engineering and Applied Physics, Cambridge, Massachusetts

(11. I. 1960)

**Abstract.** The reflectivity of *n*- and *p*-type Ge and Si at doping levels above  $10^{18}$  carriers/cc has been measured at 297° K and 90° K at wavelengths from 2 to 20 microns. The contribution of the free carriers to the total electric polarizability was determined from the reflectivity, and hence an average effective mass for the carriers was deduced. An increase in electron mass with both carrier concentration and temperature was found in both *n*-type Ge and *n*-type Si. If both effects are assumed to originate from the non-parabolic character of the conduction band, then the effect of carrier concentration is too large compared with the effect of temperature, and both effects are too large to be compatible with estimates of the band gap at the zone boundary. No definite conclusions can be drawn about *p*-type Ge owing to transitions between branches of the degenerate valence band. For *p*-type Si the effective mass increases with temperature.

### Introduction

The free carrier polarizability  $\chi_c$  in a semiconductor is given in general by

$$\chi_c = \frac{e^2}{\hbar} \int \frac{\tau^2 v_x}{1 + \omega^2 \tau^2} \frac{\partial f_0}{\partial k_x} \frac{2}{(2\pi)^3} d\Omega_k \quad (1)$$

where  $e$  is the charge of the electron,  $\hbar$  Planck's constant,  $\tau$  the scattering time,  $v_x$  the group velocity of the carrier in the field direction,  $\omega$  the angular frequency,  $f_0$  the Fermi distribution function,  $k_x$  the component of crystal momentum in the field direction, and  $d\Omega_k$  the element of volume in  $k$ -space. For Ge and Si in the infrared region we may write  $\omega\tau \gg 1$  and equation (1) may be written:

$$\chi_c = \frac{1}{4\pi^3} \frac{e^2}{\omega^2} \int v_x^2 \frac{\partial f_0}{\partial E} \frac{dS_k}{V_k E} dE \quad (2)$$

\* This work was supported by the United States Office of Naval Research under Contract Nonr 1866 (10).

\*\* Now of Laboratories R. C. A. Ltd., Zurich, Switzerland.

where  $dS_k$  is an element of a surface of constant energy  $E$ . For parabolic bands, and ellipsoidal energy surfaces equation (2) may be integrated to give the familiar result

$$-\chi_c = \frac{Ne^2}{m^*\omega^2} \quad (3)$$

where  $N$  is the carrier density and  $m^*$  is the average effective mass given by

$$\frac{3}{m^*} = \frac{1}{m_{\parallel}} + \frac{2}{m_{\perp}} \quad (4)$$

where  $m_{\parallel}$  and  $m_{\perp}$  are the longitudinal and transverse effective masses, respectively\*.

For  $p$  type Ge, assuming concentric spherical energy surfaces and parabolic bands we would have

$$\frac{1}{m^*} = \frac{m_{lh}^{1/2} + m_{hh}^{1/2}}{m_{lh}^{3/2} + m_{hh}^{3/2}} \quad (4')$$

where  $m_{lh}$  and  $m_{hh}$  refer to the light and heavy holes, respectively. If equation (4) were valid the effective mass deduced from (4') would be about 3/4 the heavy hole mass, or about 0.3 electron masses. In practice (4') is not valid because of non-parabolic effects, and furthermore (1) and (2) fail because of interband transitions. If the temperature is low enough so that the number of carriers in the lower band split by spin-orbit interaction is small, equation (4') is also applicable to  $p$ -type silicon.

### Method

#### (1) Reflectivity Measurements.

The polarizability was determined from reflectivity measurements. The reflectivity for normal incidence is given by

$$R = \frac{(n-1)^2 + \nu^2}{(n+1)^2 + \nu^2} \quad (5)$$

where  $n$  is the refractive index and  $\nu$  the extinction index which can be

\* In deriving equation (1) the internal electric field is assumed equal to the external applied field, i. e. the Lorentz correction is assumed to vanish. For a justification of this fact in the present case see D. PINES and P. NOZIERES, Phys. Rev. 109, 762 (1958). Also strictly speaking, the approximation in going from (1) to (2) requires close examination, since the impurity scattering time becomes very small for low carrier energy. A rough analysis shows that the condition for the validity of (2) is that  $E_c \ll 2 \cdot 4kT$ , where  $E_c$  is the carrier energy for which  $\omega\tau \approx 1$ . Since the correction term varies with frequency as  $\omega^{-11/3}$  the fact that no deviation from an  $\omega^{-2}$  frequency dependence is observed constitutes additional evidence for the validity of (2).

determined from transmission measurements. The polarizability is then found from:

$$\varepsilon = \varepsilon_0 + 4 \pi \chi_c = n^2 - \nu^2 \quad (6)$$

where  $\varepsilon$  is the dielectric constant and  $\varepsilon_0$  the (intrinsic) dielectric constant with no free carriers present.

The reflectivity of the samples was measured by comparison with an intrinsic germanium sample. The reflectivity of intrinsic germanium at wavelengths longer than those corresponding to the absorption edge ( $1.5 \mu$ ) can be calculated by setting  $\nu = 0$  in equation 5 and using the values of the intrinsic refractive index and its temperature coefficient reported by the authors<sup>2</sup>). At wavelengths longer than 5 microns, the reflectivity of intrinsic germanium is wavelength independent within our experimental accuracy ( $\sim 1\%$ ).

The samples to be measured were cut in slabs of 1 mm thickness and about  $1 \text{ cm}^2$  in area. One side of the slabs was optically polished with Linde A-5175 (rough polish)\*) and Gamal (final polish)\*\*). Whenever a sample was polished several times, the reflectivity was found to be reproducible within an error of 5% which can be attributed to sample alignment. The samples were mounted inside a cryostat with a single KBr window to let the radiation in and out. An angle of incidence of  $5^\circ$  was used to separate the incoming from the outgoing beam. Under these conditions, it can be shown that the departure from equation (5) is only of the order of 0.1%.

A Perkin-Elmer 12C spectrometer with KBr optics was used. The source of radiation was a globar and the detector a Reeder\*\*\*) radiation thermocouple.

## 2. Hall Measurements

### (2) Hall Measurements.

At the high carrier concentrations used in these measurements, the impurity levels are merged with the conduction or valence band, hence, the number of carriers  $N$  is temperature independent. A knowledge of the number of carriers is not required to determine the percentage change of the effective mass with temperature, but is necessary to obtain the magnitude of the effective mass. An estimate of the number of carriers can be made from Hall effect measurements. At temperature such that  $kT \ll E_F$  ( $E_F$  is the Fermi level measured from the band edge) the Hall coefficient for  $n$  type germanium or silicon is given by:

$$R_H = \frac{3}{N_{ec}} \frac{K_H (K_H + 2)}{(1 + 2 K_H)^2} \quad (7)$$

\* Linde Air Products Company, New York, New York.

\*\* Fisher Scientific Company, Fairtown, New York.

\*\*\* Charles M. Reeder and Company, Detroit 3, Michigan.

where

$$K_H = \frac{K_m}{K_\tau}, \quad K_m = \frac{m_{\parallel}}{m_{\perp}} \quad \text{and} \quad K_\tau = \frac{\tau_{\parallel}}{\tau_{\perp}}.$$

$\tau_{\parallel}$  is the longitudinal component of the scattering time tensor and  $\tau_{\perp}$  the transverse component. If the scattering time is isotropic ( $K_\tau = 1$ ) we obtain:

$$\frac{3 K_H (K_H + 2)}{(2 K_H + 1)^2} = 0.79 \text{ for germanium}$$

$$\frac{3 K_H (K_H + 2)}{(2 K_H + 1)^2} = 0.87 \text{ for silicon}$$

The scattering by ionized impurities, which is the dominant scattering mechanism in our samples, is strongly anisotropic<sup>4</sup>). The anisotropy of  $\tau$  decreases the value of  $K_H$ . Values of  $K_H$  as low as 4 have been found in impure germanium from magnetoresistance measurements<sup>6</sup>). Ham<sup>5</sup>) calculated  $K_\tau$  for pure ionized impurity scattering using an extension of the Brooks-Herring treatment and found  $K_\tau = 12$  for germanium and  $K_\tau = 4$  for silicon. The values of  $3 K_H (K_H + 2) / (2 K_H + 1)^2$  found from this analysis differ from 1 by less than 5%. However, Ham's analysis is not valid for the high carrier concentrations existing in our samples. The large anisotropy in his calculations arises from the predominance of forward scattering when the ionized impurities are only slightly screened. In heavily doped samples, in which the impurities are strongly screened, the scattering is more nearly isotropic, and hence the scattering time depends much less strongly on the initial direction of the electron, with the result that  $K_\tau$  probably does not exceed 2 in our samples.

Despite this, because of the absence of experimental determinations for samples of this doping, we have taken the factor  $3 K_H (K_H + 2) / (2 K_H + 1)^2$  as equal to unity. Any error in this assumption will affect only the absolute magnitude of the deduced effective mass and not its percentage change with temperature.

For *p*-type germanium and silicon, the situation is complicated by the degeneracy of the valence band at  $k = 0$ . If for germanium we assume spherical energy surfaces, isotropic scattering, and neglect the split-off band, then with degenerate statistics we obtain:

$$R_H = \frac{1}{\text{Nec}} \frac{(m_l^{-1/2} \tau_l^2 + m_h^{-1/2} \tau_h^2) (m_l^{3/2} + m_h^{3/2})}{(m_l^{1/2} \tau_l + m_h^{1/2} \tau_h)^2} \quad (8)$$

where  $\tau_l$  and  $\tau_h$  are the scattering times for the holes in the light and heavy mass bands, respectively. Unfortunately, very little can be said regarding the ratio of  $\tau_l/\tau_h$  for the high impurity concentrations used in these measurements. For these concentrations possibly the most plausible assumption is  $\tau_l = \tau_h$ , which substituted in equation (8) would lead to  $R_H \cong 2/\text{Nec}$ . Some microchemical evidence<sup>17</sup>) suggests that  $R_H \approx 1/\text{Nec}$ .

In the absence of definite information we have taken  $R_H = 1/\text{Nec}$ , although this assumption is even less reliable than in the case of *n*-type germanium.

### Results

(1) *n*-type germanium. The reflectivity of nine *n*-type germanium samples was measured at 297°K and 90°K (see Table 1). Their carrier

Table 1  
Heavily Doped Samples and Results of Reflectivity Measurements

Material	Origin	Source Identification Mark	Carriers/cm <sup>3</sup>	$\frac{m^*(297^\circ\text{K})}{m^*(90^\circ\text{K})}$	$\frac{m^*}{m}$
				$\frac{m^*(297^\circ\text{K})}{m^*(90^\circ\text{K})} \times 100$	
Ge, <i>n</i> -type	R. C. A.	1787	$5.2 \times 10^{19}$	6	0.26
Ge, <i>n</i> -type	Westinghouse	12	$4.4 \times 10^{19}$	6	0.24
Ge, <i>n</i> -type	Bell	1136	$1.1 \times 10^{19}$	5	0.21
Ge, <i>n</i> -type	Raytheon	322	$3.7 \times 10^{18}$	9	0.14
Ge, <i>n</i> -type	Raytheon	Pa	$2.0 \times 10^{18}$	7	0.14
Ge, <i>n</i> -type	Westinghouse	PK	?	10	?
Ge, <i>n</i> -type	Westinghouse	5	?	8	?
Ge, <i>n</i> -type	Lincoln	985	?	6	?
Ge, <i>n</i> -type	G. E.	112	?	9	
Ge, <i>p</i> -type	R. C. A.	1781	$6 \times 10^{19}$		
Ge, <i>p</i> -type	I. B. M.	44	$2.5 \times 10^{19}$		
Ge, <i>p</i> -type	Lincoln	1017	$2.4 \times 10^{19}$		
Ge, <i>p</i> -type	Westinghouse	59	$8 \times 10^{18}$		
Si, <i>n</i> -type	Bell	445	$1.1 \times 10^{20}$	10	0.44
Si, <i>n</i> -type	Bell	427 I	$6.5 \times 10^{19}$	9	0.44
Si, <i>n</i> -type	Bell	427 II	$6.4 \times 10^{19}$	9	0.43
Si, <i>n</i> -type	Bell	427 III	$6.4 \times 10^{19}$	9	0.43
Si, <i>p</i> -type	Sylvania	Sy	?	12	?

concentrations were determined from Hall measurements as discussed in the previous section. Several samples were cut from the same reflectivity specimen and the uniformity of the carrier concentration was checked. A question mark in the *N* column of Table 1 indicates samples whose carrier concentration was not uniform. These samples were not suitable for absolute effective mass measurements, but they were used for temperature coefficient determinations. The estimated accuracy in the effective mass measurements was 10%, corresponding to the error in the determination of the Hall constant. Figures 1 and 2 show the reflectivity of 4 *n*-type germanium samples at 90°K and 297°K. For small wave-



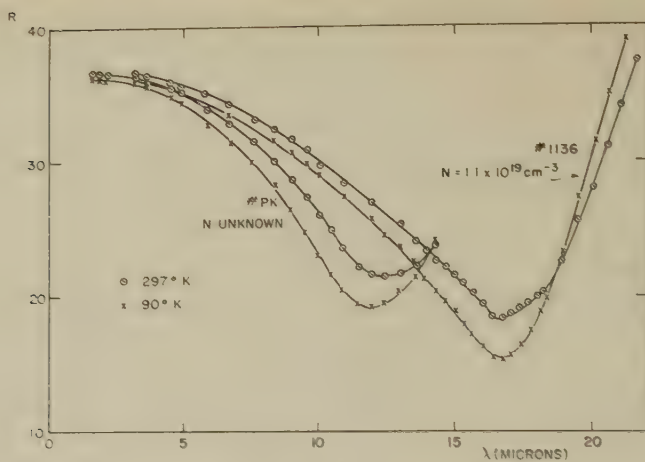


Fig. 1

Wavelength dependence of the reflectivity of heavily doped  $n$ -type germanium

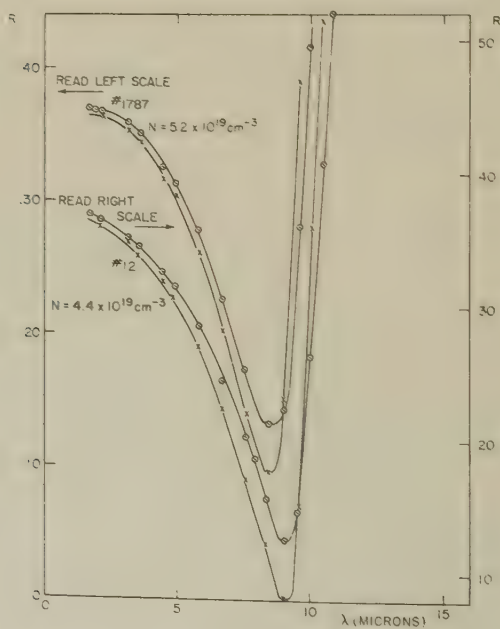


Fig. 2

Wavelength dependence of the reflectivity of heavily doped  $n$ -type germanium

lengths, the reflectivity decreases with increasing wavelength due to the decreasing refractive index. At a certain wavelength, the reflectivity goes through a minimum and starts to increase sharply due to the sharp increase of the extinction index. Since  $\nu$  depends on carrier mobility as well as effective mass, the rising portions of these curves were not used to obtain information about the mass. At wavelengths much shorter than the minimum,  $\nu$  can be neglected in equation (5). Close to the minimum  $\nu$  has to be measured to determine  $n$  from the reflectivity. Figure 3 shows

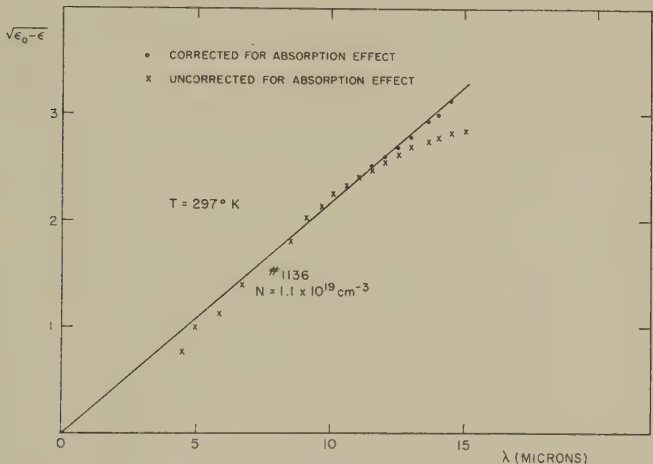


Fig. 3  
Square root of the free carrier contribution to the dielectric constant in *n*-type germanium

$\sqrt{\epsilon_0 - \epsilon}$  as a function of wavelength calculated from the reflectivity first by assuming  $\nu = 0$  and second by using the measured value of  $\nu$ . The results differ only close to the reflectivity minimum because  $\nu$  increases very rapidly with increasing wavelength. The measurement of  $\nu$  is not necessary if we determine  $m^*$  solely from the linear portion of the curve of  $\sqrt{\epsilon_0 - \epsilon}$  against  $\lambda$ , for  $\nu = 0$ .

Table 1 indicates the values of the effective masses obtained by this technique. An increase in effective mass with increasing carrier concentration was observed. While these values are subject to the error of assuming  $K_H = 1$  in the Hall formula, it is unlikely that variations in  $K_H$  can account for the observed effective mass variation with carrier concentration.

The effective mass obtained for the lowest carrier concentrations measured ( $m^* = 0.14 m$ ) is the same as the value found by Spitzer and Fan for similar carrier concentrations ( $4 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ). This value is also in fair agreement with the value calculated from the cyclotron resonance

effective masses ( $m^* = 0.12$  m), especially since the error in the Hall effect formula is such as to overestimate the effective mass ( $R_H = 0.85/\text{nec}$  corresponds to  $m^* = 0.12$  m). Specific heat measurements on a heavily doped germanium sample of similar carrier concentration ( $N = 4.7 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ) also gave an effective mass in agreement with the corresponding value of the cyclotron resonance effective mass<sup>7)</sup>. An effective mass for heavily doped  $n$ -type germanium was determined by BOWERS<sup>8)</sup> and by STEVENS *et al.*<sup>9)</sup> from diamagnetic susceptibility measurements\*). The diamagnetic susceptibility of the free carriers is, for degenerate samples, proportional to  $N^{1/3}$ , hence, accurate determinations of  $N$  are not as important as in our experiments for the determination of the effective mass. Unfortunately, the results obtained by these authors are not in agreement. While STEVENS *et al.* found an increase in effective mass with carrier concentration in qualitative agreement with our results, a constant effective mass for carrier concentrations as high as  $3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  was reported by BOWERS. No estimate of the accuracy of their measurements was given by these authors.

An average increase of  $(7 \pm 3\%)$  in the effective mass of  $n$ -type germanium was found between  $90^\circ \text{K}$  and  $297^\circ \text{K}$ . No dependence of this increase on the carrier concentration could be observed within our experimental accuracy (see Table 1). GEIST<sup>10)</sup> estimated the effective mass in  $n$ -type germanium ( $N = 8 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ) from magnetic susceptibility measurements. He found  $m^* = 0.16$  m at  $138^\circ \text{K}$  and  $m^* = 0.19$  m at  $297^\circ \text{K}$ . The accuracy of this determination is not known, but the agreement with our measurements seems reasonable.

McFARLANE *et al.*<sup>11)</sup> determined the temperature variation of the combined average of the electron and hole effective masses which appears in the expression

$$N_i = 4.8 \times 10^{15} \left( \frac{\bar{m}}{m} \right)^{-3/2} N_m^{1/2} T^{3/2} \exp(-E_g/2kT) \quad (9)$$

where  $N_m = 4$  in germanium,  $E_g$  is the thermal energy gap and:

$$\bar{m} = (m_\perp^2 m_\parallel m_h^3)^{1/6}$$

( $m_h$  is the appropriate average of the heavy and light hole effective masses). For a temperature increase of  $200^\circ \text{C}$  McFARLANE *et al.* found an increase of about 10% in  $\bar{m}$ . Direct comparison between these results

\* The effective mass average found from diamagnetic susceptibility measurements is not the same average as found from electric polarizability measurements. The magnetic susceptibility effective mass calculated from the cyclotron resonance masses is  $m^* = 0.14$  m in  $n$ -type germanium while the reflectivity effective mass is  $m^* = 0.12$  m. As these values are very close and mainly determined by the transverse effective mass, their temperature behaviour should be similar.

and ours is not possible as  $\bar{m}$  involves the hole effective masses. If the temperature coefficient of the hole effective masses were close to that of the electron effective masses, the results of McFARLANE *et al.* would be in agreement with ours.

According to Herring\*) the deviation in the temperature dependence of the mobility of *n*-type germanium ( $\propto T^{-1.66}$ ) from the theoretical acoustical scattering law ( $\propto T^{-1.50}$ ) must be due to temperature dependence of the effective mass or the deformation potential constant. If the latter is assumed constant, as the mobility is proportional to  $m^{*-5/2}$ , a temperature increase in  $m^*/m$  of 8% between 90 and 270°K would be necessary to account for the quoted discrepancy of the mobility law. This effective mass variation is in good agreement with our result.

2. *n*-type silicon. The reflectivity of four *n*-type silicon samples was measured at 297° and 90°K (see Table 1). Figure 4 shows the spectral

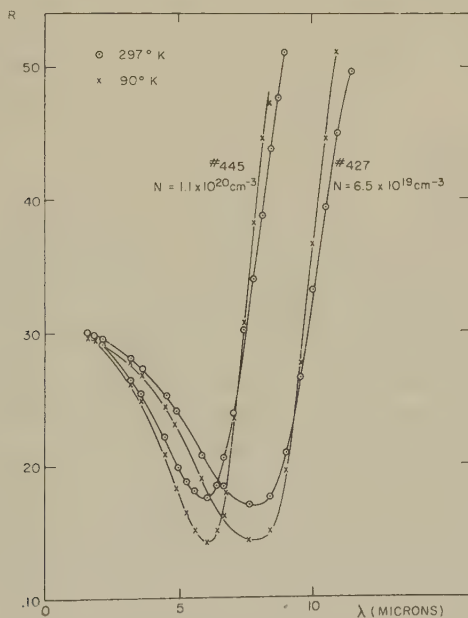


Fig. 4

Wavelength dependence of the reflectivity of heavily doped *n*-type silicon

and temperature dependence of the reflectivity of two *n*-type silicon samples. The shape of the curves in figure 4 is similar to the shape of the corresponding curves for *n*-type germanium. The effective masses ob-

\* C. HERRING, American Physical Society Meeting, Cambridge, Massachusetts, March 1959. Unpublished.

tained ( $m^* = 0.44 m$ ) were higher than the value found by SPITZER and FAN ( $m^* = 0.27 m$ ) for a sample of lower carrier concentration ( $N = 3.6 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ). This discrepancy indicates a possible increase of  $m^*$  with increasing number of carriers as in the case of germanium. On the other hand doubling the carrier concentration from sample 427I to 445 in our measurements gave no significant change in effective mass. KEE-SOM and SEIDEL<sup>7)</sup> found for  $N = 10^{19} \text{ cm}^{-3}$   $(m_{\perp}^2 m_{\parallel})^{1/3} = 0.42 m$ , while the value found from the cyclotron resonance effective masses is  $0.33 m$ . The discrepancy between these two values is in qualitative agreement with the postulated increase in effective mass with increasing carrier concentration.

SONDER and STEVENS<sup>12)</sup> determined the effective mass of heavily doped *n*-type silicon from the diamagnetic susceptibility of the free carriers. For a carrier concentration  $N = 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ , they found an average effective mass  $m^* = 0.29 m$ , in good agreement with the average determined from the cyclotron resonance effective masses ( $m^* = 0.28 m$ ). At higher carrier concentration ( $2.9 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ ) they found a larger effective mass ( $m^* = 0.38 m$ ) in fair agreement with our conclusions.

An average increase of  $(10 \pm 3\%)$  in the effective mass of *n*-type silicon was observed between 90 and 297°K (see Table 1). An increase of 10% was also found by SONDER and STEVENS<sup>12)</sup> and GEIST<sup>10)</sup> in the same temperature range from magnetic susceptibility measurements. MCFARLANE *et al.*<sup>13)</sup> found an increase in the average electron-hole effective mass of equation 9 of about 20% for a temperature increase of 200°K. The error of this determination was at least 50% of the increase found. If the temperature behaviour of the hole effective mass is roughly the same as that of the electron effective mass (see next section), qualitative agreement between these results and ours would be found.

3. *p*-type silicon. Figure 5 shows the reflectivity of a *p*-type silicon sample as a function of wavelength and temperature. The behavior of this curve is similar to that for *n*-type germanium and silicon. The inter-band transitions between the various branches of the valence band do not affect the reflectivity in the region of measurement of figure 5, as they occur at much longer wavelengths (about 30 microns). The free carrier effective mass was not determined, as the carrier concentration was not uniform in the only sample available. An increase with temperature of 12% for the average effective mass was found between 90 and 297°K. Due to the small spin orbit splitting in the valence band, the average of the effective masses at room temperature includes not only the light and heavy hole masses, but also some contribution of the hole mass in the third band lowered in energy by the spin orbit splitting. The average heavy and light hole effective masses are  $m_{hh} = 0.50 m$  and



$m_{lh} = 0.17 m$  for silicon, and the optical effective mass of equation (4') is  $m^* = .38 m$ . The heavy hole band is parabolic in KANE'S<sup>22)</sup> approximation but the light hole band flattens out as the energy increases until it becomes parallel to the heavy hole band. Hence, an increase in the

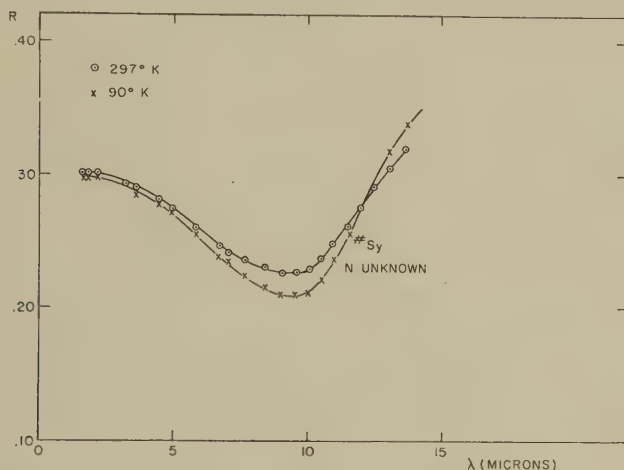


Fig. 5

Wavelength dependence of the reflectivity of heavily doped *p*-type silicon

effective mass with increasing temperature is to be expected due to the higher population of the higher effective mass states in the light mass valence band. No attempt at a quantitative estimate of this effect has been made.

4. *p*-type germanium. Figure 6 shows the reflectivity of two *p*-type germanium samples as a function of wavelength and temperature. The behavior of the reflectivity of *p*-type germanium differs from that of the preceding materials. This difference is due to the presence of transitions between the various valence band branches in the spectral region of the measurement<sup>14)</sup>. The absorption coefficient  $K$  due to these interband transitions can be found from the matrix elements for the transitions and the energy bands calculated by KANE<sup>22)</sup>. The expression for the absorption coefficient for the vertical transition between energy  $E_1$  and energy  $E_2$  at wave vector  $k$  is:

$$K = \frac{2 e^2 \hbar^3 W_{12} \left\{ f_0 \left( \frac{E_1 - E_F}{\hbar T} \right) - f_0 \left( \frac{E_2 - E_F}{\hbar T} \right) \right\}}{n \hbar c (E_1 - E_2) \left( \frac{dE_1}{dk^2} - \frac{dE_2}{dk^2} \right)} \quad (9')$$

where  $W_{12}$  is the quantity defined by KANE (eq. 36, p. 92 of ref. 22), and is related to the square of the matrix element for the transition. Inspec-

tion of KANE's Fig. 6 (p. 93 of ref. 22) and Fig. 2 (p. 88) indicates that, for the (110) direction at least,  $W_{12}$  is quite accurately proportional to  $[dE_1/dk^2 - dE_2/dk^2]$ . Using this result, together with the constant of proportionality estimated from Kane's curves, we have computed  $K$  for

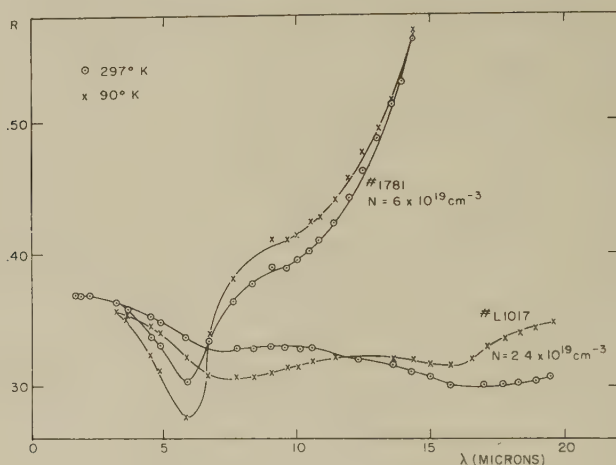


Fig. 6

Wavelength dependence of the reflectivity of heavily doped *p*-type germanium

the transitions between the two hole bands degenerate at  $k = 0$  at  $90^\circ\text{K}$  and  $297^\circ\text{K}$  for a hole concentration of  $2.2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ . Figure 7 shows the result obtained as a function of wavelength. The cut-off at  $7.2 \mu$  corresponds to the bands becoming parallel as  $k$  increases. The maximum in the absorption coefficient at  $7.2 \mu$  probably explains the hump at about  $9 \mu$  in the reflectivity curves of Figure 6.

The polarizability corresponding to these transitions can be found from:

$$\varepsilon - \varepsilon_0 = \frac{2c}{\pi} \int \frac{n_1 K(\omega_1) d\omega_1}{\omega_1^2 - \omega^2} \quad (9'')$$

We have estimated  $\varepsilon - \varepsilon_0$  by substituting in (9'')  $n_1 \approx \sqrt{\varepsilon_0}$  as found at  $\lambda = 6 \mu$ :

$$\left. \begin{aligned} \varepsilon - \varepsilon_0 &= -4.3 \text{ at } 297^\circ\text{K} \\ \varepsilon - \varepsilon_0 &= -5.6 \text{ at } 90^\circ\text{K} \end{aligned} \right\} \text{A}$$

This result qualitatively accounts for the minimum reflectivity found at  $\lambda = 7 \mu$  and its temperature dependence. At  $\lambda = 6 \mu$  we find from Figure 6:

$$\left. \begin{aligned} \varepsilon - \varepsilon_0 &= -2.3 \text{ at } 297^\circ\text{K} \\ \varepsilon - \varepsilon_0 &= -3.3 \text{ at } 90^\circ\text{K} \end{aligned} \right\} \text{B}$$

Hence, we must conclude that there is a positive polarizability due to transitions between the lower split off band and the upper valence bands which compensates the negative free carrier polarizability and accounts

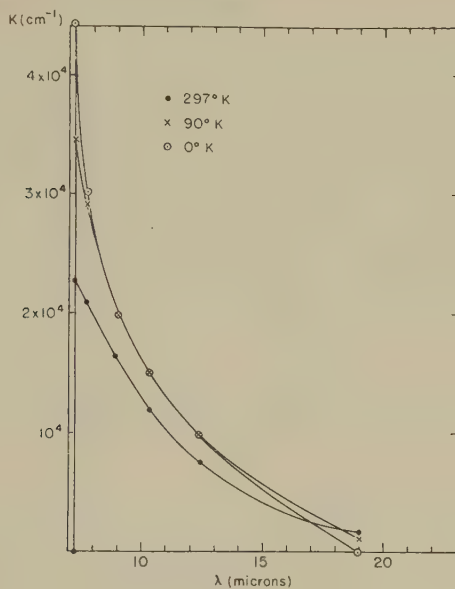


Fig. 7

Calculated absorption coefficient for *p*-type germanium with  $2.2 \times 10^{19}$  carriers  $\times \text{cm}^{-3}$  due to interband transitions

for the difference between A and B. Under these circumstances, no reliable values of the effective mass can be obtained from reflectivity measurements.

5. *Discussion.* The temperature variation of the effective mass can be divided into two contributions, one due to the thermal expansion of the lattice and the other an explicit effect of temperature. The effect of the thermal expansion can be estimated from the pressure dependence of the effective mass. NATHAN<sup>15)</sup> estimated for *n*-type germanium an increase in the average effective mass of  $(5 \pm 5)\%$  in 10000 kg/cm<sup>2</sup>. Hence, if the variation of the effective mass with temperature were due to the volume effect only, a decrease of  $(2 \pm 2)\%$  between 90° K and 297° K would be expected, whereas an increase was actually found. This shows that the explicit temperature effect is larger than the volume effect and has the opposite sign. The explicit temperature effect can be divided into two contributions, one due to a change in the curvature at the band extremum and the other the result of the spread with temperature of the Fermi distribution in a non parabolic band.

In order to estimate this last effect we assume for the energy in the neighborhood of the (111) minimum of the conduction band an expression of the form:

$$E = -\Delta + \alpha k_x^2 + \sqrt{\Delta^2 + \beta^2 (k_x^2 + k_y^2)} \quad (10)$$

where  $2\Delta$  is the energy separation between the (111) minimum of the conduction band ( $L_1$ ) and the  $L_3'$  energy of the valence band. An expression of this form would correspond to the interpretation given by PHILLIPS<sup>18</sup>) for the relative intensity of the absorption edge at 2.1 ev. reported by PHILLIP and TAFT<sup>19</sup>. However, there is some ambiguity in this result, which will not seriously affect our conclusions. The constants  $\alpha$  and  $\beta$  are related to the longitudinal and transverse masses at the bottom of the band by:

$$\frac{1}{m_{\perp}} = \frac{\beta^2}{\Delta \hbar^2} \quad \frac{1}{m_{\parallel}} = \frac{2\alpha}{\hbar^2}$$

By substituting equation (10) into equation (2) the following approximate expression for the effective mass in equation (3) is found (see Appendix A):

$$\frac{3}{m^*} = \left( \frac{1}{m_{\parallel}} + \frac{2}{m_{\perp}} \right) \left[ 1 - \frac{4}{3 \left( 1 + \frac{m_{\perp}}{2m_{\parallel}} \right) \Delta} \frac{\int_0^{\infty} f_0 E^{3/2} dE}{\int_0^{\infty} f_0 E^{1/2} dE} \right] \quad (11)$$

The Fermi level is given exactly for equation (10) by the solution of:

$$N = n_m \frac{\sqrt{2} m_{\parallel}^{1/2} m_{\perp}}{\pi^2 \hbar^3} \int_0^{\infty} E^{1/2} \left( 1 + \frac{2E}{3\Delta} \right) f_0 \left( \frac{E - E_F}{kT} \right) dE \quad (12)$$

where  $n_m$  is the number of minima in the conduction band. For classical statistics, equation 11 becomes

$$\frac{3}{m^*} = \left( \frac{1}{m_{\parallel}} + \frac{2}{m_{\perp}} \right) \left[ 1 - \frac{2}{1 + \frac{m_{\perp}}{2m_{\parallel}}} \frac{kT}{\Delta} \right] \quad (13)$$

More generally the result may be written

$$\frac{3}{m^*} = \left( \frac{1}{m_{\parallel}^*} + \frac{2}{m_{\perp}} \right) \left[ 1 - \frac{4kT}{3 \left( 1 + \frac{m_{\perp}}{2m_{\parallel}} \right) \Delta} \frac{\int_0^{\infty} x^{3/2} f_0(x - \eta) dx}{\int_0^{\infty} x^{1/2} f_0(x - \eta) dx} \right] \quad (14)$$

$\Delta$  can be estimated from the experiments of PHILIPP and TAFT<sup>19</sup>), who find a strong increase in the absorption coefficient of germanium at about 2 ev. This absorption has been ascribed to the  $L_1 - L_3'$  energy gap<sup>18</sup>).

ROTH and LAX<sup>20</sup>) estimated  $\Delta = 0.8$  ev. from the anisotropy of the  $g$ -factor of shallow donor levels in germanium at  $4^\circ\text{K}$ . They suggested that an increase in  $\Delta$  with temperature might be responsible for the difference between this value of  $\Delta$  and the one found by PHILIPP and TAFT, but this result is subject to further confirmation. In our calculations we have taken the average value  $\Delta = 0.9$  ev. With this assumption, equation (13) yields an increase of 3.9% in  $1/m^*$  between  $90^\circ\text{K}$  and  $297^\circ\text{K}$ . The calculated values of the second term in brackets in eq. (14) are listed in Table 2 for several carrier concentrations. Table 2 shows that the increment of the effective mass between  $297^\circ\text{K}$  and  $90^\circ\text{K}$  decreases with increasing carrier concentration. Nevertheless, the value of  $(m^*/m)_{297^\circ\text{K}} - (m^*/m)_{90^\circ\text{K}}$  for the sample of lowest carrier concentration measured only differs from the value for the highest carrier concentration by about 1.5% and this change cannot be detected within our large experimental error (3%).

The increase in effective mass shown in Table 2 is about half that observed. This must be due either to a smaller value of  $\Delta$  than we have

Table 2

Theoretical Effective Mass for  $n$ -type Ge for Various Cases, where

$$\left(\frac{m}{m^*}\right)_{0^\circ\text{K., class.}} = \frac{1}{3} \frac{m}{m_{\parallel}} + \frac{2}{3} \frac{m}{m_{\perp}}, \quad m_{\parallel} = 1.58 m, \quad m_{\perp} = 0.084 m$$

	$E_F(\text{ev})$			$\left(\frac{m^*}{m}\right)_{T^\circ\text{K}} - \left(\frac{m^*}{m}\right)_{0^\circ\text{K., class.}}$			$\left(\frac{m^*}{m}\right)_{297^\circ\text{K}} - \left(\frac{m^*}{m}\right)_{90^\circ\text{K}}$
				$\left(\frac{m^*}{m}\right)_{0^\circ\text{K., class.}}$			$\left(\frac{m^*}{m}\right)_{0^\circ\text{K., class.}}$
Classical Statistics	$0^\circ\text{K}$	$90^\circ\text{K}$	$297^\circ\text{K}$	$0^\circ\text{K}$	$90^\circ\text{K}$	$297^\circ\text{K}$	
				0	0.168	0.0554	0.0386
$N = 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$	0.019	0.015	0.016	0.0158	0.0248	0.0580	0.0332
$N = 10^{19} \text{ cm}^{-3}$	0.030	0.029	0.0064	0.0256	0.0319	0.0642	0.0323
$N = 5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$	0.087	0.085	0.079	0.0748	0.0774	0.0977	0.0202

estimated or to a decrease in the band extremum curvature with increasing temperature. The latter would require only about a 3% change in band gap with temperature and does not seem unlikely. This does not correspond to the pressure results of NATHAN<sup>15</sup>), if one assumes that the change in band gap is wholly due to the change in lattice constant with temperature.



Table 2 also enables us to estimate the influence of doping on the apparent effective mass. This changes the reciprocal mass by a maximum of 10% from the value at low doping. However, we see from Table 1 that doping nearly halves the reciprocal mass for the highest carrier concentration. The discrepancy is in the same direction as for the temperature effect, but is considerably larger. It would require an unreasonably small value of  $\Delta$ . It would seem more likely that there exists an explicit effect on the band curvature due to the high impurity content.

6. *Acknowledgements.* The present work would not have been possible without the cooperation of a great many individuals and industrial laboratories who supplied the samples used in the measurements. The samples listed in Table 1 were obtained through the kindness of Drs. M. C. STEELE from R. C. A., R. BOWERS from Westinghouse, J. PATEL from RAYTHEON, W. W. TYLER from G. E., M. I. NATHAN from I. B. M., W. G. SPITZER from Bell and P. MOODY from Lincoln Laboratory.

### Appendix A

The condition for the determination of the FERMI level may be written:

$$N = \frac{1}{4\pi^3} \int f_0 \left( \frac{E - E_F}{kT} \right) d\Omega_k = \frac{1}{4\pi^3} \int_0^\infty dE f_0 \left( \frac{E - E_F}{kT} \right) \int_E \frac{dS_k}{|V_k E|} \quad (\text{A.1})$$

Similarly, by comparison of equation (2) and (3) we see that the effective mass tensor may be written:

$$\frac{N}{m^*} = \frac{1}{4\pi^3 h^2} \int_0^\infty dE \frac{\partial f_0 \left( \frac{E - E_F}{kT} \right)}{\partial E} \int_E V_k E V_k E \frac{dS_k}{|V_k E|} \quad (\text{A.2})$$

where in (A. 1) and (A. 2) the second integral is taken over a surface of constant energy  $E$ .

If we assume that each surface of constant energy is a surface of revolution and take  $k_z$  along the revolution axis, then if  $E = f(k_\rho, k_z)$  in cylindrical coordinates we find:

$$\frac{dS_k}{|V_k E|} = \frac{1}{2} \frac{dk_\rho^2}{dE} dk_z d\varphi \quad (\text{A.3})$$

where  $\varphi$  is the angle about the axis of revolution. Since the overall symmetry of the energy surfaces is cubic, the tensor derivative in equation (A. 2) may be replaced by the scalar

$$\frac{1}{3} V_k E \cdot V_k E$$

so that (A. 2) becomes:

$$\frac{N}{m^*} = -\frac{1}{4\pi^2\hbar^2} \int_0^\infty dE \frac{\partial f_0 \left( \frac{E-E_F}{kT} \right)}{\partial E} \int_E \frac{1}{3} \left[ \left( \frac{\partial E}{\partial k_z} \right)^2 + \left( \frac{\partial E}{\partial k_z} \right)^2 \right] \frac{dk_z^2}{dE} dk_z \quad (\text{A.4})$$

Equation (A. 1) and (A. 4) may now be specialized for the case of equation (10) of the text, using (A. 3). Equation (A. 1) may be evaluated exactly as:

$$N = \frac{n_m \Delta^{1/2}}{2\pi^2 \alpha^{1/2} (\beta^2/2\Delta)} \int_0^\infty \left[ \left( \frac{E}{\Delta} \right)^{1/2} + \frac{2}{3} \left( \frac{E}{\Delta} \right)^{3/2} \right] f_0 \left( \frac{E-E_F}{kT} \right) dE \quad (\text{A.5})$$

where  $n_m$  is the number of minima in the conduction band. This may be written in the form

$$F_{1/2}(\eta) \left[ 1 + \frac{2}{3} \frac{kT}{\Delta} \frac{F_{3/2}(\eta)}{F_{1/2}(\eta)} \right] = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \frac{N}{N_c} \quad (\text{A.6})$$

Here 
$$N_c = \frac{n_m}{\sqrt{2}} \left( \frac{kT}{2\pi} \right)^{3/2} \frac{1}{\alpha^{1/2} (\beta^2/2\Delta)} = 2 n_m \left( \frac{2\pi m^{**} kT}{\hbar^2} \right)^{3/2} \quad (\text{A.7})$$

where  $m^{**}$  is the density of states effective mass, and

$$F_p(\eta) = \int_0^\infty \frac{x^p}{1 + e^{x-\eta}} dx \quad (\text{A.8})$$

the Fermi-Dirac integral tabulated by BEER, CHASE and CHOQUARD<sup>21</sup>) with  $\eta = E_F/kT$ .

Equation (A. 4) can also be evaluated exactly; the  $k_z$  integration takes the form:

$$+ \frac{(E/\alpha)^{1/2}}{\int_{-(E/\alpha)^{1/2}}^{(E/\alpha)^{1/2}}} \frac{E + \Delta - \alpha k_z^2}{2\pi^2 \hbar^2} \left[ \frac{1}{3} - \frac{1}{3} \frac{\Delta^2}{(E + \Delta - \alpha k_z^2)^2} + \frac{4}{3} \frac{\alpha^2 k_z^2}{\beta^2} \right] dk_z \quad (\text{A.9})$$

In practice we are only interested in values of  $E$  such that  $E - \alpha k_z^2 \ll \Delta$ . Hence, it is most convenient to expand the integrand in terms of  $(E - \alpha k_z^2)/\Delta$  retaining only the two lowest orders. Equations (A. 9) then reduces to:

$$\left. \begin{aligned} \int_{-(E/\alpha)^{1/2}}^{(E/\alpha)^{1/2}} dk_z &= \frac{\Delta}{2\pi^2 \hbar^2} \frac{2}{3} \int_{-(E/\alpha)^{1/2}}^{(E/\alpha)^{1/2}} dk_z \left[ \frac{E - \alpha k_z^2}{\Delta} \left\{ 1 - \frac{1}{2} \frac{E - \alpha k_z^2}{\Delta} + \right. \right. \\ &\left. \left. + \frac{2\alpha^2 k_z^2}{\beta^2} \right\} + \frac{2\Delta}{3\pi^2 \hbar^2} \frac{\alpha^2 k_z^2}{\beta^2} \right] = \\ &\left. \frac{2}{3\pi^2 \hbar^2} \frac{E^{3/2}}{\alpha^{1/2} (\beta^2/2\Delta)} \left( \frac{1}{3} \alpha + \frac{2}{3} \frac{\beta^2}{2\Delta} \right) \cdot \left\{ 1 - \frac{2}{5} \frac{E}{\Delta} \frac{1 - \alpha\Delta/\beta^2}{1 + \alpha\Delta/\beta^2} \right\} \right\} \quad (\text{A.10}) \end{aligned}$$

If we carry out the  $E$  integration we find:

$$\frac{N}{m^*} = \frac{1}{\hbar^2} \left( \frac{2}{3} \alpha + \frac{2}{3} \frac{\beta^2}{\Delta} \right) \frac{2}{\sqrt{\pi}} N_c \left[ F_{1/2}(\eta) - \frac{2}{3} \frac{\hbar T}{\Delta} \frac{1 - \alpha \Delta / \beta^2}{1 + \alpha \Delta / \beta^2} F_{3/2}(\eta) \right] \quad (\text{A.11})$$

Combining (A. 11) with (A. 7) to eliminate  $N_c$  we obtain finally

$$\frac{1}{m^*} = \frac{1}{3} \left( \frac{1}{m_{\parallel}} + \frac{2}{m_{\perp}} \right) \left[ 1 - \frac{2}{3} \frac{\hbar T}{\Delta} \frac{2}{1 + m_{\perp}/2 m_{\parallel}} \frac{F_{3/2}(\eta)}{F_{1/2}(\eta)} \right] \quad (\text{A.12})$$

correct to order  $\hbar T/\Delta$ , where

$$\frac{1}{m_{\parallel}} = \frac{2\alpha}{\hbar^2}, \quad \frac{1}{m_{\perp}} = \frac{\beta^2}{\hbar^2 \Delta} \quad (\text{A.13})$$

$$m^{**} = (m_{\parallel} m_{\perp}^2)^{1/3}$$

### References

- 1) SPITZER, W. G., and FAN, H. Y., Phys. Rev. *106*, 882 (1957).
- 2) CARDONA, M., PAUL, W., and BROOKS, H. J., Phys. Chem. of Solids *8*, 204 (1959).
- 3) HERRING, C., and VOGT, E., Phys. Rev. *101*, 944 (1956).
- 4) BROOKS, H., Advances in Electronics and Electron Physics, *7*, 85.
- 5) HAM, F., Phys. Rev. *100*, 1251A (1955).
- 6) GOLDBERG, C., Phys. Rev. *109*, 337 (1958); GLICKSMAN, M., Phys. Rev. *108*, 264 (1957).
- 7) KEESOM, P., SEIDEL, G., Phys. Rev. *113*, 33 (1959).
- 8) BOWERS, R., J. Phys. Chem. of Solids *8*, 210 (1959).
- 9) STEVENS, P. K., LELAND, J. W., CRAWFORD, J. H., and SCHWEINLER, H. C., Phys. Rev. *100*, 1084 (1955).
- 10) GEIST, D., Die Naturwissenschaften *45*, 33 (1958).
- 11) MCFARLANE, G. G., McLEAN, T. P., QUARRINGTON, J. E., and ROBERTS, V., Phys. Rev. *108*, 1377 (1957).
- 12) SONDER, E., and STEVENS, D. K., Phys. Rev. *110*, 1027 (1958).
- 13) MCFARLANE, G. G., McLEAN, T. P., QUARRINGTON, J. E., and ROBERTS, V., Phys. Rev. *111*, 1245 (1958).
- 14) KAISER, W., COLLINS, R. J., and FAN, H. Y., Phys. Rev. *91*, 1380 (1953).
- 15) NATHAN, J. I., PAUL, W. and BROOKS, H., Am. Phys. Soc. Bull. *3*, 14 (1958).
- 16) SEITZ, F., Modern Theory of Solids (McGraw-Hill, New York).
- 17) TRUMBORE, F. A., and TARTAGLIA, A. A., J. App. Phys. *29*, 1511 (1958).
- 18) PHILLIPS, J. C., Private Communication.
- 19) PHILIPP, H. R., and TAFT, E. A., Phys. Rev. *113*, 1002 (1959).
- 20) ROTH, L. M., and LAX, B., Phys. Rev. Letters *3*, 217 (1959).
- 21) BEER, A. C., CHASE, M. N., and CHOQUARD, P. F., Helv. Phys. Acta *28*, 529 (1955).
- 22) KANE, E. O., J. Phys. Chem. of Solids *7*, 82 (1956).

# Wightman-Funktionen und retardierte Kommutatoren II

von O. Steinmann

Physikalisches Institut der ETH, Zürich

20. II. 1960

*Abstract.* The consequences of the basic postulates of quantum field theory (Lorentz-invariance, locality, stability of the vacuum) for the retarded products are investigated by considering their connection with Wightman's functions. Necessary and sufficient conditions for the existence of a Wightman function corresponding to a prescribed  $r$ -function are given. The Fourier transform  $\tilde{r}(p_1, \dots, p_n)$  of  $r$  is a boundary value of a function  $\tilde{r}(k_1, \dots, k_n)$  regular in a domain  $\mathfrak{R}_n$ .  $\mathfrak{R}_n$  is constructed by a recursive procedure. Other boundary values  $\tilde{g}_\mu(p_1, \dots, p_n)$  of this function are considered. They have to fulfill a set of linear identities of four and twelve terms respectively.

## 1. Einleitung

In einer früheren Arbeit<sup>1)</sup> (im folgenden als A zitiert) wurden notwendige und hinreichende Bedingungen dafür angegeben, dass zu einer vorgegebenen retardierten Vierpunkt-Funktion  $r(x_0, \dots, x_3)$  die zugehörige Wightman-Funktion  $W(x_0, \dots, x_3)$  existiert. Diese Bedingungen sollen hier auf den Fall der  $n$ -Punkt-Funktion verallgemeinert werden.

Das Vorgehen ist dasselbe wie im Falle der Vierpunktfunktion. Der Einfachheit halber beschränken wir uns wie üblich auf den Fall eines einzigen skalaren Feldoperators  $A(x)$ . In einem ersten Schritt werden wir den Zusammenhang zwischen der Wightman-Funktion

$$W(x_0, \dots, x_n) = \langle A(x_0) \dots A(x_n) \rangle_0 \quad (1)$$

und dem iterierten Kommutator

$$K(x_0, \dots, x_n) = \langle [\dots [A(x_0), A(x_1)], \dots, A(x_n)] \rangle_0 \quad (2)$$

untersuchen. Aus den dabei erhaltenen Bedingungen für  $K$  werden wir dann Eigenschaften der Funktion

$$r(\xi_1, \dots, \xi_n) = \langle R(x_0, \dots, x_n) \rangle_0, \quad \xi_i = x_0 - x_i \quad (3)$$

$$R(x_0, \dots, x_n) =$$

$$\sum_{P(1, \dots, n)} \theta(x_0 - x_{i_1}) \theta(x_{i_1} - x_{i_2}) \dots \theta(x_{i_{n-1}} - x_{i_n}) [\dots [A(x_0), A(x_1)] \dots A(x_n)] \quad (4)$$

resp. deren Fouriertransformierten  $\tilde{r}(p_1, \dots, p_n)$  herleiten.

Speziell wird sich ergeben, dass die analytische Funktion  $\tilde{r}(k_1, \dots, k_n)$ , deren Randwert  $\tilde{r}(p_1, \dots, p_n)$  in bekannter Weise ist, (siehe A) in ein grosses Gebiet  $\overline{\mathfrak{R}}_n$  analytisch fortgesetzt werden kann. Neben  $\tilde{r}(p_j)$  werden wir noch andere Randwerte  $\tilde{g}_\mu(p_j)$  betrachten. Zwischen einzelnen dieser Randwerte bestehen viergliedrige, resp. zwölfgliedrige lineare Identitäten.

Diese Bedingungen für  $\tilde{r}(k_j)$ , d. h. Regularität in  $\overline{\mathfrak{R}}_n$  und Bestehen der erwähnten Randwertidentitäten, sind zusammen mit den bereits bekannten Eigenschaften (Symmetrie, Lorentzinvarianz) hinreichend für die Existenz von  $K$  und damit von  $W$ .  $W$  kann aus  $\tilde{r}(k_j)$  explizit berechnet werden und ist im wesentlichen eindeutig bestimmt. (Für die Diskussion der auftretenden Mehrdeutigkeiten siehe A.)

## 2. Der mehrfache Kommutator

Wir wollen hier die Eigenschaften des durch (2) definierten mehrfachen Kommutators untersuchen. Speziell sollen notwendige und hinreichende Bedingungen dafür angegeben werden, dass die zugehörige Wightman-Funktion (1) existiert und die richtigen Eigenschaften<sup>2)</sup> hat. Von dem von WIGHTMAN angegebenen System von quadratischen Ungleichungen werden wir dabei allerdings absehen, d. h. wir berücksichtigen nur die linearen Bedingungen.

Neben dem iterierten Kommutator  $K$  betrachten wir auch alle Operatoren (resp. deren Vakuum Erwartungswerte) der allgemeinen Form

$$O_\mu(x_0, \dots, x_n) = [O_\alpha(x_{i_0}, \dots, x_{i_h}), O_\beta(x_{i_{h+1}}, \dots, x_{i_n})], \quad (5)$$

wobei  $(i_0, \dots, i_n)$  eine Permutation der Indizes  $(0, \dots, n)$  darstellt und die  $O_\alpha, O_\beta$  entweder Feldoperatoren  $A(x_j)$  oder selber wieder von der Form (5) sind. In allen  $O_\mu$  treten somit  $n$  Kommutatorklammern auf. Die zugehörigen Vakuum Erwartungswerte bezeichnen wir mit  $\langle O_\mu \rangle$ . Alle  $\langle O_\mu \rangle$  lassen sich mit Hilfe der Jacobischen Identität als Summen von  $K$ -Funktionen schreiben.

Es gilt:

Folgende Bedingungen sind notwendig und hinreichend für die Existenz von  $W$ :

a) Die  $\langle O_\mu \rangle$  haben die richtigen Antisymmetrien, d. h. entsteht  $O_\nu$  aus  $O_\mu$  durch die Ersetzung eines Kommutators  $[O_\alpha, O_\beta]$  durch  $[O_\beta, O_\alpha]$ , so gilt  $\langle O_\mu \rangle + \langle O_\nu \rangle \equiv 0$ . Ebenso sind alle Jacobi-Identitäten erfüllt.

b)  $K(x_0, \dots, x_n)$  ( und damit jedes  $\langle O_\mu \rangle$ ) ist invariant gegen die inhomogene eigentliche Lorentzgruppe.

c)  $K$  ist lokal, d. h.

$$K(x_0, x_1, \dots, x_n) = 0, \quad \text{falls } (x_0 - x_1)^2 < 0. \quad (6)$$



Allgemeiner erhält man daraus: Tritt in  $O_\mu$  der Kommutator  $[A(x_i), A(x_j)]$  auf, so ist  $\langle O_\mu \rangle = 0$  für  $(x_i - x_j)^2 < 0$ .

d) Ist  $O_\mu = [O_\alpha, O_\beta]$ , so gilt für die Fouriertransformierte  $\mathfrak{F} O_\mu(p_0, \dots, p_n)$ :

$$\langle \mathfrak{F} O_\mu \rangle = 0, \quad \text{falls } \left( \sum_\beta p_i \right)^2 < 0. \quad (7)$$

$\sum_\beta$  bedeutet dabei Summation über alle in  $O_\beta$  auftretenden Argumente.

Dass diese Bedingungen notwendig sind, ist leicht einzusehen, da sie unmittelbar aus den Eigenschaften der Wightman-Funktionen folgen. Dass sie auch hinreichend sind, beweist man durch explizite Konstruktion von  $W$  durch ein Rekursionsverfahren:

Seien alle

$$\langle O_0(x_{i_0}, \dots, x_{j_0}) \dots O_{N-1}(x_{i_{N-1}}, \dots, x_{j_{N-1}}) \rangle$$

für ein festes  $N \leq n$  bekannt, wobei die  $O_i$  von der Form (5) sind und alle Variablen  $x_0, \dots, x_n$  genau einmal auftreten. Dann definieren wir

$$\mathfrak{F} \langle O_0 \dots O_N \rangle = \theta \left( - \sum_{O_0} p_i \right) \sum_{j=1}^N \mathfrak{F} \langle O_1 \dots O_{j-1} [O_0, O_j] O_{j+1} \dots O_N \rangle. \quad (8)$$

Durch  $n$ -malige Anwendung dieser Definition erhält man aus den  $\langle O_\mu \rangle$  die gewünschte Funktion  $W(x_0, \dots, x_n)$ . Durch eine umständliche, aber elementare Rechnung weist man nach, dass das so konstruierte  $W$  unter den angegebenen Voraussetzungen über  $K$  tatsächlich die richtigen Eigenschaften aufweist.

### 3. Die G-Operatoren

Aus den in § 2 hergeleiteten Eigenschaften von  $K(x_0, \dots, x_n)$  sollen nun Bedingungen für  $r(x_0, \dots, x_n)$  hergeleitet werden. Dazu benötigen wir eine Verallgemeinerung des retardierten Kommutators  $R(x_0, \dots, x_n)$ , welche in diesem Paragraphen eingeführt werden soll.

Sei  $H(x_0, \dots, x_{h-1})$  ein Operator der Form

$$H(x_0, \dots, x_{h-1}) = \sum_{P(0, \dots, h-1)} f_P(x_0, \dots, x_{h-1}) A(x_{i_0}) \dots A(x_{i_{h-1}}), \quad (9)$$

wobei die  $f_P$  beliebige  $c$ -Zahl-Funktionen sind.

Wir definieren

$$\begin{aligned} H(x_0, \dots, x_{h-1}) \uparrow A(x_h) &\equiv H(x_0, \dots, x_{h-1} \uparrow x_h) \\ &\equiv \sum_{i=0}^{h-1} \theta(x_i - x_h) H(x_0, \dots, \overline{x_i x_h}, \dots, x_{h-1}), \end{aligned} \quad (10)$$

$$\begin{aligned} H(x_0, \dots, x_{h-1}) \downarrow A(x_h) &\equiv H(x_0, \dots, x_{h-1} \downarrow x_h) \\ &\equiv - \sum_{i=0}^{h-1} \theta(x_h - x_i) H(x_0, \dots, \overline{x_i x_h}, \dots, x_{h-1}). \end{aligned} \quad (11)$$

$\overline{x_i x_h}$  bedeutet dabei die Ersetzung des Feldoperators  $A(x_i)$  durch den Kommutator  $[A(x_i), A(x_h)]$ .

Die so definierten Operatoren  $H(x_0, \dots, x_{h-1} \updownarrow x_h)$  ( $\updownarrow$  bedeutet  $\uparrow$  oder  $\downarrow$ ) sind wieder von der Form (9). Unser Verfahren kann also beliebig oft hintereinander angewandt werden, was in evidenter Bezeichnungsweise die Operatoren

$$H(x_0, \dots, x_{h-1} \updownarrow x_h \updownarrow x_{h+1} \updownarrow \dots) \equiv H(x_0, \dots, x_{h-1}) \updownarrow A(x_h) \updownarrow A(x_{h+1}) \updownarrow \dots$$

ergibt.

Es gilt:

$$\left. \begin{aligned} [H_1(x_0, \dots, x_k), H_2(x_{k+1}, \dots, x_{h-1})] \updownarrow A(x_h) = \\ [H_1 \updownarrow A(x_h), H_2] + [H_1, H_2 \updownarrow A(x_h)] \end{aligned} \right\} \quad (12)$$

Die Pfeilrichtung ist dabei natürlich in allen Termen dieselbe.

Ferner:

$$\begin{aligned} & H(x_0, \dots, x_{h-1} \uparrow x_h) - H(x_0, \dots, x_{h-1} \downarrow x_h) \\ &= \sum_{i=0}^{h-1} H(x_0, \dots, \overline{x_i x_{h-1}}, \dots, x_{h-1}) \\ &= \sum_P \left\{ f_P(x_0, \dots, x_{h-1}) \sum_{j=0}^{h-1} A(x_{i_0}) \dots [A(x_{i_j}), A(x_h)] \dots A(x_{i_{h-1}}) \right\} \\ &= [H(x_0, \dots, x_{h-1}), A(x_h)]. \end{aligned} \quad (13)$$

Wir verwenden die Abkürzung

$$[x_0, \dots, x_n] = [\dots [A(x_0), A(x_1)], \dots, A(x_n)]. \quad (14)$$

Für  $H = \theta(x_0 - x_1) \dots \theta(x_{h-2} - x_{h-1}) [x_0, \dots, x_{h-1}]$  wird unsere Definition von  $H \updownarrow A$  zu

$$\begin{aligned} & \theta(x_0, \dots, x_{h-1}) [x_0, \dots, x_{h-1}] \updownarrow A(x_h) \\ &= \theta(x_0, \dots, x_{h-1}) \sum_{j=0}^{h-1} \theta(x_j - x_h) [x_0, \dots, \overline{x_j x_h}, \dots, x_{h-1}] \\ &= \sum_{j=0}^{h-1} \theta(x_0, \dots, x_j, x_h, x_{j+1}, \dots) \sum_{k=0}^j [x_0, \dots, \overline{x_k x_h}, \dots, x_{h-1}] \\ &= \sum_{j=0}^{h-1} \theta(x_0, \dots, x_j, x_h, x_{j+1}, \dots, x_{h-1}) [x_0, \dots, x_j, x_h, x_{j+1}, \dots, x_{h-1}] \end{aligned} \quad (15)$$

mit  $\theta(x_0, \dots, x_n) = \theta(x_0 - x_1) \dots \theta(x_{n-1} - x_n)$ . In der letzten Umformung wurde die Jacobi-Identität benützt. Wegen (13) gilt auch:

$$\theta(x_0, \dots, x_{h-1}) [x_0, \dots, x_{h-1}] \downarrow A(x_h)$$

$$\begin{aligned}
&= \sum_{i=0}^{h-1} \theta(x_0, \dots, x_j, x_h, x_{j+1}, \dots) [x_0, \dots, x_j, x_h, \dots, x_{h-1}] - \\
&\quad - \theta(x_0, \dots, x_{h-1}) [x_0, \dots, x_h].
\end{aligned} \tag{16}$$

Man erhält damit sofort die wichtigen Beziehungen

$$\left. \begin{aligned} R(x_0, \dots, x_{h-1} \uparrow x_h) &= R(x_0, \dots, x_{h-1}, x_h) \\ R(x_0, \dots, x_{h-1} \downarrow x_h) &= R(x_0, \dots, x_h) - [R(x_0, \dots, x_{h-1}), A(x_h)] \end{aligned} \right\} \tag{17}$$

Mit Hilfe des Spezialfalls  $R(x_0, x_1 \uparrow x_2) = R(x_0, x_1, x_2) = R(x_0, x_2 \uparrow x_1)$  lässt sich einsehen, dass allgemein

$$\left. \begin{aligned} H(x_0, \dots, x_h \uparrow x_{h+1} \uparrow x_{h+2}) &= H(x_0, \dots, x_h \uparrow x_{h+2} \uparrow x_{h+1}) \\ H(x_0, \dots, x_h \downarrow x_{h+1} \downarrow x_{h+2}) &= H(x_0, \dots, x_h \downarrow x_{h+2} \downarrow x_{h+1}) \end{aligned} \right\} \tag{18}$$

Wir betrachten jetzt speziell die Operatoren

$$A(x_0 \uparrow x_1 \uparrow \dots \uparrow x_k) = A(x_0) \uparrow A(x_1) \uparrow \dots \uparrow A(x_k). \tag{19}$$

Sie sind nach (17) und (12) Summen von mehrfachen Kommutatoren von  $R$ -Operatoren, also lorentzinvariant.

Der Kommutator  $[H(x_0, \dots, x_k), A(x_{k+1} \uparrow x_{k+2} \uparrow \dots \uparrow x_n)]$  lässt sich nach (12) wie folgt umformen:

$$\begin{aligned}
&[H, A(x_{k+1} \uparrow \dots \uparrow x_n)] \\
&= [H, A(x_{k+1} \uparrow \dots \uparrow x_{n-1})] \uparrow A(x_n) - [H \uparrow A(x_n), A(x_{k+1} \uparrow \dots \uparrow x_{n-1})] \\
&= \dots,
\end{aligned}$$

wobei der bei einem festen  $x_j$  stehende Pfeil in allen Termen derselbe ist. Fortgesetzte Anwendung dieses Verfahrens ergibt schliesslich eine Summe von Gliedern der Form

$$\begin{aligned}
&[H \uparrow \dots, A(x_{k+1})] \uparrow \dots \\
&= H \uparrow \dots \uparrow A(x_{k+1}) \uparrow \dots - H \uparrow \dots \downarrow A(x_{k+1}) \uparrow \dots
\end{aligned}$$

nach (13). Man erhält so

$$\begin{aligned}
&[H(x_0, \dots, x_k), A(x_{k+1} \uparrow \dots \uparrow x_n)] \\
&= \sum_P (-1)^{s(P)} H(x_0, \dots, x_k \uparrow x_{i_{k+1}} \uparrow \dots \uparrow x_{k+1} \uparrow \dots \uparrow x_{i_n}) \left\{ \begin{aligned} &\uparrow x_{k+1} \rightarrow \downarrow x_{k+1} \end{aligned} \right\} \tag{20}
\end{aligned}$$

Die Summen  $\sum_P$  sind über die Permutationen von  $(x_{k+1}, \dots, x_n)$  zu erstrecken, die in der Entwicklung des mehrfachen Kommutators  $[\dots [x_{k+1}, x_{k+2}], \dots, x_n] = [\dots [x_{k+1}, \dots] x_n - x_n [\dots [x_{k+1}, \dots] = \dots$  auftreten. Auch die Vorzeichen  $(-1)^s$  entsprechen den Vorzeichen in dieser Entwicklung. Mit anderen Worten:  $\sum_P$  läuft über alle Permutationen, bei denen kein Index  $j$  zwischen zwei niedrigeren Indizes steht.  $s(P)$  ist die Zahl der  $x_j$ , die vor allen  $x_i$ ,  $i > j$ , stehen.

Sei  $\uparrow x_{k+2}$ , resp.  $\downarrow x_{k+2}$ . Dann verschwindet in (20) die erste, resp. die zweite Summe wegen (18), da z. B. im ersten Fall mit dem Term  $\dots \uparrow x_{k+1} \uparrow x_{k+2} \dots$  immer auch der Term  $\dots \uparrow x_{k+2} \uparrow x_{k+1} \dots$  mit dem umgekehrten Vorzeichen auftritt. Es bleiben also nur die Summanden mit  $\downarrow x_{k+1}$ , resp.  $\uparrow x_{k+1}$  stehen.

Wir definieren nun  $H(x_0, \dots, x_k) \uparrow A(x_{k+1} \downarrow \dots \downarrow x_n)$  als Summe derjenigen Glieder in (20), bei denen der erste Pfeil nach  $x_k$  aufwärts gerichtet ist:

$$H \uparrow A(x_{k+1} \downarrow \dots) = \pm \sum_P' (-1)^{s(P)} H(\dots, x_k \uparrow x_{i_{k+1}} \downarrow \dots \downarrow x_{i_n}) \quad (21)$$

und entsprechend

$$-H \downarrow A(x_{k+1} \downarrow \dots) = \pm \sum_P'' (-1)^{s(P)} H(\dots, x_k \downarrow x_{i_{k+1}} \downarrow \dots \downarrow x_{i_n}). \quad (22)$$

womit

$$H \uparrow A(x_{k+1} \downarrow \dots) - H \downarrow A(x_{k+1} \downarrow \dots) = [H, A(x_{k+1} \downarrow \dots)] \quad (23)$$

gilt.

Diese Definition der  $\uparrow$ -Operation dehnen wir durch lineare Fortsetzung auf Operatoren der Form

$$G(x_{k+1}, \dots, x_n) = \sum_{P(k+2, \dots, n)} \varepsilon_p A(x_{k+1} \downarrow x_{i_{k+2}} \downarrow \dots \downarrow x_{i_n}), \quad \varepsilon_p = 0, \pm 1 \quad (24)$$

aus:

$$H(x_0, \dots, x_k) \downarrow G(x_{k+1}, \dots, x_n) \equiv \sum_P \varepsilon_p H \downarrow A(x_{k+1} \downarrow x_{i_{k+2}} \downarrow \dots \downarrow x_{i_n}). \quad (25)$$

Damit gilt wieder

$$[H, G] = H \uparrow G - H \downarrow G. \quad (26)$$

Ist  $H(x_0, \dots, x_k)$  selbst von der Form (24), so gilt das offensichtlich auch für  $H \downarrow G$ , d. h. die Menge der Operatoren (24) (für beliebige Variablenzahlen) ist gegen die Pfeiloperation abgeschlossen.

Jetzt sind wir in der Lage, die gewünschte Verallgemeinerung der  $R$ -Operatoren einzuführen. Wir definieren die Mengen  $\mathfrak{G}_n$  von Operatoren  $G_\mu(x_0, \dots, x_n)$  durch folgende Rekursionsvorschrift:

a)  $\mathfrak{G}_0$  besteht aus dem einzigen Element  $A(x_0)$

b)  $\mathfrak{G}_n$  besteht aus allen Operatoren

$$G_{\mu \uparrow \nu}(x_0, \dots, x_n) = G_{\mu}(x_0, \dots, x_k) \uparrow G_{\nu}(x_{k+1}, \dots, x_n) \quad (27)$$

mit  $G_{\mu} \in \mathfrak{G}_k, G_{\nu} \in \mathfrak{G}_{n-k-1}, k = 0, 1, \dots, n-1$

Diese Vorschrift ist offenbar sinnvoll, da die so konstruierten  $G_{\mu}$  alle von der Form (24) sind.

$\mathfrak{G}_n$  enthält speziell den Operator

$$A(x_0) \uparrow A(x_1) \uparrow \dots \uparrow A(x_n) = R(x_0, \dots, x_n). \quad (28)$$

Es gilt

$$[G_{\mu}, G_{\nu}] = G_{\mu \uparrow \nu} - G_{\mu \downarrow \nu}. \quad (29)$$

Für den Spezialfall  $G_{\mu} \in \mathfrak{G}_0$  lässt sich beweisen:

$$\left. \begin{aligned} A(x_0) \uparrow G_{\nu}(x_1, \dots, x_n) &= G_{\nu}(x_1, \dots, x_n) \downarrow A(x_0) \\ A(x_0) \downarrow G_{\nu}(x_1, \dots, x_n) &= G_{\nu}(x_1, \dots, x_n) \uparrow A(x_0) \end{aligned} \right\} \quad (30)$$

Im allgemeinen Fall gelten jedoch die entsprechenden Gleichungen nicht!

Im folgenden werden wir einige Eigenschaften der Träger der  $G$ -Operatoren benutzen, die aus der lokalen Vertauschbarkeit der Feldoperatoren  $A(x)$  folgen. Wir behaupten:

$G_{\mu}(x_0, \dots, x_n)$  verschwindet ausserhalb einer Menge, die durch Bedingungen der Form  $(x_i - x_j) \in V_+$  ( $V_+$  = Vorkegel) charakterisiert ist, wobei diese Bedingungen untereinander sowohl durch sowohl-als-auch als auch durch entweder-oder-Relationen verknüpft sein können.  $G_{\mu}(x_0, \dots, x_k) \uparrow G_{\nu}(x_{k+1}, \dots, x_n)$  hat in  $(x_0, \dots, x_k)$  denselben Träger wie  $G_{\mu}(x_0, \dots, x_k)$ .

Den Beweis führen wir durch allgemeine Induktion, wobei es genügt, den Fall  $G_{\mu}(x_0, \dots, x_k) \uparrow A(x_{k+1})$  zu betrachten.

Wir nehmen also an,  $G_{\mu}$  habe einen Träger der angegebenen Form. Die Bedingung  $(x_i - x_j) \in V_+$  soll dadurch zustandekommen, dass  $G_{\mu}$  als Summe von Termen geschrieben werden kann, die alle oder zum Teil (für eine entweder-oder-Bedingung) Bestandteile der Form  $\theta(x_{i_1}, x_{i_2}, \dots, x_{i_h}) \times [x_{i_1}, \dots, x_{i_h}]$ ,  $i_1 = i, i_h = j$ , enthalten. Diese Voraussetzung gilt in  $\mathfrak{G}_1$ , das aus den beiden Elementen  $\theta(x_0 - x_1) [x_0, x_1]$  und  $\theta(x_1 - x_0) [x_1, x_0]$  besteht.

Anwendung der Operation  $\uparrow A(x_{k+1})$  auf einen solchen Term ergibt nach (15)

$$\begin{aligned} \sum_{i=1}^{h-1} \theta(x_{i_1}, \dots, x_{i_j}, x_{k+1}, \dots, x_{i_h}) [x_{i_1}, \dots, x_{i_j}, x_{k+1}, \dots, x_{i_h}] + \\ + \theta(x_{i_h} - x_{k+1}) [\theta(x_{i_1}, \dots, x_{i_h}) [x_{i_1}, \dots, x_{i_h}], A(x_{k+1})] \end{aligned}$$



Jeder der auftretenden Summanden enthält wieder einen Bestandteil der betrachteten Art, die Bedingung  $(x_i - x_j) \in V_+$  bleibt somit bestehen. Zusätzlich erhält man noch die Bedingung

$$(x_i - x_{k+1}) \in V_+ \text{ für mindestens ein } i \leq k, \quad (31)$$

da ja jeder Summand in  $G_\mu \wedge A$  einen Operator  $\theta(x_i - x_{k+1}) (x_i, x_{k+1})$  enthält.

Entsprechend erhält man für  $G_\mu \wedge A(x_{k+1})$  die Zusatzbedingung

$$(x_{k+1} - x_i) \in V_+ \text{ für mindestens ein } i \leq k, \quad (32)$$

während die Bedingungen in  $(x_0, \dots, x_k)$  wiederum bestehen bleiben.

#### 4. Verhalten im p-Raum

Wir betrachten die Vakuum Erwartungswerte

$$g_\mu(\xi_1, \dots, \xi_n) = \langle G_\mu(x_0, \dots, x_n) \rangle_0, \quad \xi_i = x_0 - x_i \quad (33)$$

der G-Operatoren, resp. deren Fouriertransformierte

$$\tilde{g}(p_1, \dots, p_n) = \int d^4\xi_1 \dots d^4\xi_n e^{i\sum p_j \xi_j} g_\mu(\xi_1, \dots, \xi_n). \quad (34)$$

In diesem Paragraphen werden wir folgenden Satz beweisen:

$\tilde{g}_\mu(p_1, \dots, p_n)$  ist Randwert einer analytischen Funktion  $\tilde{g}_\mu(k_1, \dots, k_n)$ ,  $k_j = p_j - iq_j$ , deren Regularitätsgebiet eine Röhre  $\mathfrak{R}_\mu$  folgender Art ist:

Jeder Teilmenge I der Indizes  $(1, \dots, n)$  wird ein Halbkegel  $V_{\sigma(\mu, I)}$  ( $\sigma = +$  oder  $-$ ) zugeordnet. Dann

$$\mathfrak{R}_\mu = \{(k_1, \dots, k_n) \mid \sum_{j \in I} q_j \in V_{\sigma(\mu, I)}, \text{ alle } I\} \quad (35)$$

Es können  $n$ -Teilmengen  $I_\nu$  derart angegeben werden, dass das System der zugehörigen Bedingungen

$$Q_i \in V_{\sigma(\mu, I_i)}, \quad Q = \sum_{I_i} q_j \quad (36)$$

mit dem System aller  $2^n - 1$  in (35) auftretenden Bedingungen äquivalent ist. Die Menge  $\{Q_i\}$  nennen wir die Basis von  $\mathfrak{R}_\mu$ .

Es ist zu beachten, dass  $\mathfrak{R}_\mu$  von der im ersten Lemma von HALL und WIGHTMAN<sup>3)</sup> betrachteten Form ist.  $\tilde{g}_\mu$  ist also in das Gebiet

$$\mathfrak{R}'_\mu = \bigcup_{A \in L_+(C)} A \mathfrak{R}_\mu \quad (37)$$

analytisch fortsetzbar.

Den Beweis des angegebenen Satzes führen wir durch Induktion. Sei  $G_\mu \in \mathfrak{G}_h$ ,  $G_\nu \in \mathfrak{G}_{n-h-1}$ . Sei  $\tilde{g}_\mu(k_1, \dots, k_h)$  in  $\mathfrak{R}_\mu$  regulär, ebenso  $\tilde{g}_\nu(k_{h+2}, \dots, k_n)$  in  $\mathfrak{R}_\nu$ . Dann behaupten wir, dass  $\tilde{g}_{\mu \uparrow \nu}(p_1, \dots, p_n)$  wieder Randwert einer analytischen Funktion  $\tilde{g}_{\mu \uparrow \nu}(k_j)$  ist, und dass die zugehörigen Röhren  $\mathfrak{R}_{\mu \uparrow \nu}$  wie folgt charakterisiert sind:

Sei  $I_\mu = \{q_1, \dots, q_h\}$ ,  $I_\nu = \{q_{h+1}, \dots, q_n\}$ .  $q$ -Summen, die nur Summanden aus einem der  $I$  enthalten, liegen in  $\mathfrak{R}_{\mu \uparrow \nu}$  im selben Halbkegel wie die entsprechende Summe in  $\mathfrak{R}_\mu$ , resp.  $\mathfrak{R}_\nu$ . In  $\mathfrak{R}_\nu$  ist dabei die Beziehung

$q_{h+1} = - \sum_{i=h+2}^n q_i$  zu verwenden. Die Summe über alle  $q_j \in I_\nu$  liegt in  $V_+$  resp.

$V_-$  für  $\mathfrak{R}_{\mu \uparrow \nu}$  resp.  $\mathfrak{R}_{\mu \downarrow \nu}$ . Summen, die Glieder aus beiden  $I$  enthalten, liegen im selben Halbkegel wie die darin enthaltenen Partialsummen aus  $I_\mu$ .

Die entsprechende Basis  $Q_1, \dots, Q_n$  erhält man offenbar aus den Basen  $Q_1^\mu, \dots, Q_h^\mu, Q_{h+2}^\nu, \dots, Q_n^\nu$  von  $\mathfrak{R}_\mu, \mathfrak{R}_\nu$  wie folgt:

$$\left. \begin{aligned} Q_i &= Q_i^\mu + \sum_{\substack{q_j \in I_\nu \\ q_j \sim Q_i^\mu}} q_j, & Q_i &\sim Q_i^\mu, & i &= 1, \dots, h \\ Q_{h+1} &= \sum_{I_\nu} q_j, & Q_{h+1} &\in V_+, V_- \text{ für } \mathfrak{R}_{\mu \uparrow \nu}, \mathfrak{R}_{\mu \downarrow \nu} \text{ resp.} \\ Q_i &= Q_i^\nu, & \text{falls } Q_i^\nu &\sim Q_{h+1} \\ Q_i &= Q_{h+1} - Q_i^\nu, & Q_i &\sim Q_i^\nu, \text{ falls } Q_i^\nu &\sim Q_{h+1}. \end{aligned} \right\} \quad i = h+2, \dots, n \quad (38)$$

Dabei bedeutet  $P \sim Q$  ( $P \sim Q$ ), dass die Vektoren  $P$  und  $Q$  im selben Halbkegel (in verschiedenen Halbkegeln) liegen.

Zum Beweis dieser Induktionsbehauptung benötigen wir einen Hilfssatz, dessen Beweis im Anhang gegeben werden wird:

*Lemma.* Sei  $G(x_0, \dots, x_n) \in \mathfrak{G}_n$ , also eine Summe von Termen der Form (19). Wir lassen nun die Variable  $x_f$  ( $1 \leq f \leq n$ ) in allen diesen Summanden weg und erhalten so einen wohldefinierten Operator  $G^f(x_0, \dots, x_{f-1}, x_{f+1}, \dots, x_n)$ . Dann ist  $G^f \in \mathfrak{G}_{n-1}$ , und  $\mathfrak{R}_{G^f}$  ergibt sich aus  $\mathfrak{R}_G$  durch Weglassen der  $q_f$  enthaltenden Bedingungen.

$G_\mu(x_0, \dots, x_h) \uparrow G_\nu(x_{h+1}, \dots, x_n)$  ist nach Definition eine Summe von Gliedern der Form

$$G_\mu(x_0, \dots, x_h) \uparrow A(x_{i_{h+1}}) \updownarrow \dots \updownarrow A(x_{i_n}). \quad (39)$$

Wir betrachten eine Aufteilung  $T$  der Variablen  $x_{h+1}, \dots, x_n$  in  $h+1$  Teilmengen  $T_0, \dots, T_h$  und definieren einen Operator  $G_{\mu \uparrow \nu}^T(x_0, \dots, x_n)$ . Dieser entsteht aus  $G_{\mu \uparrow \nu}$  dadurch, dass in allen Summanden (39) die Mengen  $T_i$  in der richtigen Reihenfolge (und mit den richtigen Pfeilen) an die in  $G_\mu$  vorhandenen Feldoperatoren  $A(x_i)$  angehängt werden.  $G_\mu \uparrow G_\nu$  ist die Summe dieser  $G_{\mu \uparrow \nu}^T$  über alle Aufteilungen  $T$ .

Betrachten wir speziell den Fall, dass alle  $T_i$  ausser dem einen  $T_j$  leer sind.  $G_{\mu \uparrow \nu}^T$  entsteht dann aus  $G_{\mu}$  einfach durch Ersetzung des Faktors  $A(x_j)$  durch  $A(x_j) \uparrow G_{\nu}(x_{h+1}, \dots, x_n)$ .  $G_{\mu \uparrow \nu}^T$  hat also die dem Operator  $A(x_j) \uparrow G_{\nu}$  zukommenden Trägereigenschaften. Im allgemeinen Fall ergibt sich ebenfalls eine Ersetzung von  $A(x_j)$  durch einen  $G$ -Operator, der mit  $A(x_j) \uparrow G_{\nu}$  in dem im vorstehenden Lemma angegebenen Zusammenhang steht.

Wie wir schon wissen, hat  $G_{\mu} \uparrow G_{\nu}$  in  $x_0, \dots, x_h$  denselben Träger wie  $G_{\mu}$ . Der Träger in  $x_{h+1}, \dots, x_n$  ist in der Vereinigungsmenge sämtlicher  $G^T$ -Träger enthalten. Wir behaupten, dass

$$\sum_{i=1}^n q_i \xi_i > 0 \quad (40)$$

für alle  $\xi_i$  aus diesem Träger und alle  $\{q_i\} \in \mathfrak{R}_{\mu \uparrow \nu}$ . Sei speziell  $\xi_i \in t(G_{\mu})$  für  $i \leq k$ ,  $\xi_i \in t(G_{\mu \uparrow \nu}^T)$  für  $i > k$ ,  $T$  eine beliebige Aufteilung. Dann gilt in  $R_{\mu \uparrow \nu}$ :

$$\sum_1^n q_i \xi_i = \sum_{i \in T_0} \xi_i q_i + \sum_{\alpha=1}^h \sum_{i \in T_{\alpha}} (\xi_i - \xi_{\alpha}) q_i + \sum_{\alpha=1}^h \xi_{\alpha} (q_{\alpha} + \sum_{i \in T_{\alpha}} q_i) > 0,$$

da unter den gemachten Voraussetzungen alle drei Glieder einzeln  $> 0$  sind. Dabei ist die Induktionsvoraussetzung verwendet worden, dass alle Behauptungen für den Fall  $A(x_0) \uparrow G_{\nu}(x_1, \dots, x_h)$ ,  $h < n$ , gelten. Den Spezialfall  $A(x_0) \uparrow G(x_1, \dots, x_n)$  führt man mit Hilfe von (30) auf den hier betrachteten Fall zurück.

Aus (40) folgt aber sofort die behauptete Regularität von  $\tilde{g}_{\mu \uparrow \nu}$  in  $\mathfrak{R}_{\mu \uparrow \nu}$ . Der Beweis für den Fall  $G_{\mu} \downarrow G_{\nu}$  verläuft genau gleich.

Zusätzlich zu diesen Regularitätsaussagen erhält man noch Aussagen über das Anwachsen von  $\tilde{g}_{\mu \uparrow \nu}$  im Unendlichen, die hier nicht explizit angegeben werden sollen (siehe A).

## 5. Die Funktion $\tilde{r}(\mathbf{k}_1, \dots, \mathbf{k}_n)$

Wir betrachten die Gesamtheit der in § 4 definierten Funktionen  $\tilde{g}_{\mu}(k_1, \dots, k_n)$  für ein festes  $n$ . Diese Gesamtheit enthält speziell die Funktion  $\tilde{r}(k_1, \dots, k_n)$ .  $\tilde{g}_{\mu}$  ist nach (37) in  $\mathfrak{R}'_{\mu}$  regulär.

Durch allgemeine Induktion beweisen wir

$$G_{\mu}(x_0, \dots, x_n) = R(x_0, \dots, x_n) + \\ + \text{Glieder der Form } [H_{\alpha}(x_{i_0}, \dots, x_{i_k}), H_{\beta}(\dots, x_{i_n})] \quad (41)$$

$G_{\mu}(x_0, \dots, x_n)$  besteht nach Konstruktion aus Gliedern der allgemeinen Form  $\pm A(x_0 \uparrow x_1 \downarrow \dots)$  resp.  $\pm A(x_0 \downarrow x_1 \uparrow \dots)$ . Dabei ist die Zahl der positiven Summanden um eins grösser als die Zahl der negativen: Gelte

das nämlich für  $G_\alpha$  und  $G_\beta$ ,  $\mu = \alpha \uparrow \beta$ . Wir greifen je einen Term aus  $G_\alpha$  und  $G_\beta$  heraus und betrachten

$$A(x_0 \uparrow \dots) \uparrow A(x_{k+1} \downarrow x_{k+2} \downarrow \dots) = \\ \pm \sum_P (-1)^{s(P)} A(x_0 \downarrow \dots x_k \uparrow x_{i_{k+1}} \downarrow \dots \downarrow x_{i_n})$$

nach (21). Dabei gilt das  $+$  vor  $\sum_P$  im Falle  $\downarrow x_{k+2}$ , das  $-$  im Falle  $\uparrow x_{k+2}$ .

Zu jedem Summanden mit  $i_{k+1} \neq k+1, k+2$  gibt es auch einen Summanden, in dem  $x_{k+1}, x_{k+2}$  vertauscht sind und der dementsprechend das umgekehrte Vorzeichen aufweist. Zusätzlich zu diesen Paaren hat man im Fall  $\downarrow x_{k+2}$  einen positiven Term mit  $i_{k+1} = k+1$ , im andern Fall einen negativen Term mit  $i_{k+1} = k+2$ . Daraus ergibt sich sofort unsere Behauptung über die Zahl der positiven und negativen Summanden in  $G_{\alpha \uparrow \beta}$  und analog für  $G_{\alpha \downarrow \beta}$ . Nun ist nach (12) und (17)

$$A(x_0 \uparrow \dots \downarrow x_n) = R(x_0, \dots, x_n) + \sum [H_\alpha, H_\beta],$$

woraus sich auf Grund der vorangehenden Bemerkung die Beziehung (41) ergibt.

Die Fouriertransformierte von  $\langle [H_\alpha(x_{i_0}, \dots, x_{i_k}), H_\beta(x_{i_{k+1}}, \dots, x_{i_n})] \rangle_0$  verschwindet auf Grund der Spektralbedingungen, falls  $(p_{i_{k+1}} + \dots + p_{i_n})^2 < 0$ . Das gilt speziell in den Jost-Punkten<sup>4)</sup>, d. h. in den reellen Regularitätspunkten von  $\tilde{r}(k_1, \dots, k_n)$ . Es lässt sich leicht zeigen, dass  $\mathfrak{R}'$  und  $\mathfrak{R}'_\mu$  gemeinsame reellen Umgebungen enthalten. In diesen Umgebungen gilt somit nach (41)

$$\tilde{g}_\mu(k_1, \dots, k_n) = \tilde{r}(k_1, \dots, k_n), \quad (42)$$

d. h.  $\tilde{g}_\mu$  ist eine analytische Fortsetzung von  $\tilde{r}$  in das Gebiet  $\mathfrak{R}'_\mu$ .

Wir haben damit folgendes *Theorem* bewiesen:

Die Funktion  $\tilde{r}(k_1, \dots, k_n)$  ist in das Gebiet

$$\overline{\mathfrak{R}_n} = \bigvee_{G\mu \in \mathfrak{G}_n} \mathfrak{R}'_\mu \quad (43)$$

analytisch fortsetzbar. Alle Funktionen (genauer: Distributionen)  $\tilde{g}_\mu(p_1, \dots, p_n)$  sind Randwerte dieser Funktion  $\tilde{r}$ :

$$\tilde{g}_\mu(p_1, \dots, p_n) = \lim_{\substack{\{k_i\} \in \mathfrak{R}_\mu \\ q_i \rightarrow 0}} \tilde{r}(k_1, \dots, k_n), \quad k_j = p_j + iq_j. \quad (44)$$

Zusätzlich zu dieser Regularitätsaussage unterliegt  $\tilde{r}$  noch der früher erwähnten Bedingungen über das Verhalten im Unendlichen.

Eine so einfache Charakterisierung des Gebietes  $\mathfrak{R}_n$  wie im Falle der Vierpunktfunktion ist im allgemeinen Fall nicht bekannt. Man ist hier auf die im Text gegebene rekursive Definition angewiesen (siehe dazu auch § 8).

## 6. Identitäten

Neben der eben hergeleiteten Regularitätsforderung ergeben sich aus den Eigenschaften von  $K$  noch weitere Bedingungen für  $\tilde{r}$ , nämlich gewisse Identitäten zwischen  $G$ -Operatoren und somit zwischen speziellen Randwerten von  $\tilde{r}$ .

Es muss gelten:

$$[G_\mu, G_\nu] = -[G_\nu, G_\mu], \quad (43)$$

also

$$G_{\mu \uparrow \nu}(x_0, \dots, x_n) - G_{\mu \downarrow \nu}(x_0, \dots, x_n) \equiv G_{\nu \downarrow \mu}(x_0, \dots, x_n) - G_{\nu \uparrow \mu}(x_0, \dots, x_n). \quad (44)$$

Die gleiche Identität gilt natürlich für die entsprechenden  $\tilde{g}$ -Funktionen:

$$\lim_{\substack{\{k_j\} \in \mathfrak{R}_{\mu \uparrow \nu} \\ q_j \rightarrow 0}} \tilde{r}(k_j) - \lim_{\substack{\{k_j\} \in \mathfrak{R}_{\mu \downarrow \nu} \\ q_j \rightarrow 0}} \tilde{r}(k_j) \equiv \lim_{\substack{\{k_j\} \in \mathfrak{R}_{\nu \downarrow \mu} \\ q_j \rightarrow 0}} \tilde{r}(k_j) - \lim_{\substack{\{k_j\} \in \mathfrak{R}_{\nu \uparrow \mu} \\ q_j \rightarrow 0}} \tilde{r}(k_j) \quad (45)$$

Allgemeinere Identitäten erhält man, wenn man beachtet, dass zu (44) beliebige  $G$ -Operatoren in beliebiger Reihenfolge durch die Pfeiloperation hinzugefügt werden können, resp. dass (44) zu beliebigen  $G$ 's hinzugefügt werden kann, z. B.

$$G_\alpha \uparrow G_{\mu \uparrow \nu} - G_\alpha \uparrow G_{\mu \downarrow \nu} = G_\alpha \uparrow G_{\nu \downarrow \mu} - G_\alpha \uparrow G_{\nu \uparrow \mu}$$

usw. Es ergibt sich so:

$$\lim_{\substack{\{k_j\} \in \mathfrak{R}_{\dots(\mu \uparrow \nu)\dots} \\ q_j \rightarrow 0}} \tilde{r}(k_j) - \lim_{\substack{\{k_j\} \in \mathfrak{R}_{\dots(\mu \downarrow \nu)\dots} \\ q_j \rightarrow 0}} \tilde{r}(k_j) = \lim_{\substack{\{k_j\} \in \mathfrak{R}_{\dots(\nu \downarrow \mu)\dots} \\ q_j \rightarrow 0}} \tilde{r}(k_j) - \lim_{\substack{\{k_j\} \in \mathfrak{R}_{\dots(\nu \uparrow \mu)\dots} \\ q_j \rightarrow 0}} \tilde{r}(k_j) \quad (46)$$

Auf genau dieselbe Weise erhält man aus der Jacobi-Identität

$$[[G_\alpha, G_\beta], G_\gamma] + [[G_\beta, G_\gamma], G_\alpha] + [[G_\gamma, G_\alpha], G_\beta] \equiv 0 \quad (47)$$

zwölfgliedrige Beziehungen der Form

$$G_{\dots(\alpha \uparrow \beta \uparrow \gamma)\dots} - G_{\dots(\alpha \uparrow \beta \downarrow \gamma)\dots} - G_{\dots(\alpha \downarrow \beta \uparrow \gamma)\dots} + G_{\dots(\alpha \downarrow \beta \downarrow \gamma)\dots} + \text{zykl.} = 0, \quad (48)$$

welche natürlich ebenfalls als Randwertidentitäten für  $\tilde{r}(k_j)$  geschrieben werden können.

## 7. Umkehrung

Wir haben jetzt zu zeigen, dass die eben hergeleiteten Bedingungen für  $\tilde{r}$ , nämlich Regularität in  $\mathfrak{R}_n$  und Bestehen der Identitäten (46) und (48), für die Existenz von  $K$  (und damit von  $W$ ) hinreichend sind.

Sei also eine analytische Funktion  $\tilde{r}(k_1, \dots, k_n)$  mit folgenden Eigenschaften gegeben:

A)  $\tilde{r}$  ist regulär in  $\mathfrak{R}_n$  (und erfüllt dort die erwähnten Bedingungen im Unendlichen).



B)  $\tau$  ist in  $\overline{\mathfrak{R}}_n$  invariant gegen die komplexe homogene Lorentzgruppe  $L_+(C)$  (d. h. mit Determinante + 1).

C)  $\tilde{\tau}$  ist invariant gegen Permutationen der Argumente  $k_1, \dots, k_n$  und gegen die Ersetzung  $k_i \rightarrow k_0 = -\sum_{j=1}^n k_j$ .

D) Die Randwerte von  $\tilde{\tau}$  in den reellen Punkten erfüllen die in § 6 angegebenen Identitäten.

Dann lässt sich das zugehörige  $K(x_0, \dots, x_n)$  mit den Eigenschaften a) bis d) aus § 2 wie folgt konstruieren:

Wir definieren

$$\tilde{g}_\mu(p_1, \dots, p_n) = \lim_{\substack{\{k_j\} \in \mathfrak{R}_\mu \\ q_j \rightarrow 0}} \tilde{\tau}(k_1, \dots, k_n) \quad (49)$$

und erhalten daraus durch Fouriertransformation

$$g_\mu(\xi_1, \dots, \xi_n) \equiv \langle G_\mu(x_0, \dots, x_n) \rangle_0, \quad \xi_i = x_0 - x_i \quad (50)$$

Weiter definieren wir

$$\begin{aligned} & \langle [\dots [G_\mu(x_0, \dots, x_i), G_\nu(x_{i+1}, \dots, x_j)], O_1(x_{j+1}, \dots)], O_h(\dots, x_n)] \rangle_0 \equiv \\ & \equiv \langle [\dots [G_{\mu \uparrow \nu}, O_1], \dots, O_h] \rangle_0 - \langle [\dots [G_{\mu \downarrow \nu}, O_1], \dots, O_h] \rangle_0, \end{aligned} \quad (51)$$

wobei die  $O_r$  aus  $G$ -Operatoren nach der Vorschrift (5) aufgebaute Kommutatorausdrücke sind.

Durch fortgesetzte Anwendung dieser Definition erhält man schliesslich  $K(x_0, \dots, x_n)$  und allgemeiner alle in § 2 betrachteten  $\langle O_\mu \rangle$ .

Die Bedingungen a) bis d) sind offenbar erfüllt:

a) gilt als Folge von D), wie man durch Induktion beweist.

Translationsinvarianz besteht trivialerweise. Die Invarianz gegen die homogene eigentliche Lorentzgruppe folgt aus B), da die Definitionen (49) und (51) eine invariante Bedeutung haben.

Die Fouriertransformierte des durch (51) definierten Ausdrucks ist nach Konstruktion in  $p_1, \dots, p_i$  Randwert einer in  $\mathfrak{R}_\mu$  analytischen Funktion. Speziell ist die Fouriertransformierte von  $\langle [\dots [R(x_0, x_1), A(x_2)], \dots], A(x_n)] \rangle_0$  eine in  $\mathfrak{R}$  analytische Funktion der Variablen  $k_1$ . Wie üblich folgt daraus

$$\langle [\dots [R(x_0, x_1), \dots]] \rangle_0 = 0 \quad \text{für} \quad (x_0 - x_1) \notin V_+$$

und damit

$$\begin{aligned} & K(x_0, \dots, x_n) \\ &= \langle [\dots [R(x_0, x_1), \dots]] \rangle_0 - \langle [\dots [R(x_1, x_0), \dots]] \rangle_0 = 0 \\ & \quad \text{für} \quad (x_0 - x_1)^2 < 0, \end{aligned}$$

womit auch c) bewiesen ist.

Die in Bedingung d) auftretenden Ausdrücke

$$\langle [O_\alpha(x_0, \dots, x_k), O_\beta(x_{k+1}, \dots, x_n)] \rangle_0$$

sind nach Definition Summen von Termen der Form

$$\begin{aligned} T(x_0, \dots, x_n) &= \langle [G_\mu(x_0, \dots, x_k), G_\nu(x_{k+1}, \dots, x_n)] \rangle_0 \\ &= g_{\mu \uparrow \nu}(\xi_1, \dots, \xi_n) - g_{\mu \downarrow \nu}(\xi_1, \dots, \xi_n) \end{aligned} \quad (52)$$

oder im Impulsraum

$$\begin{aligned} \tilde{T}(p_1, \dots, p_n) &= \tilde{g}_{\mu \uparrow \nu}(p_1, \dots, p_n) - \tilde{g}_{\mu \downarrow \nu}(p_1, \dots, p_n) \\ &= \lim_{\substack{\{k_i\} \in \mathfrak{R}_{\mu \uparrow \nu} \\ q_i \rightarrow 0}} \tilde{r}(k_j) - \lim_{\substack{\{k_i\} \in \mathfrak{R}_{\mu \downarrow \nu} \\ q_i \rightarrow 0}} \tilde{r}(k_j). \end{aligned} \quad (53)$$

Nun unterscheiden sich die Gebiete  $\mathfrak{R}_{\mu \uparrow \nu}$  und  $\mathfrak{R}_{\mu \downarrow \nu}$  nur durch die Lage der Summe  $\sum_{k=1}^h q_j$  ( $\in V_+$  resp.  $\in V_-$ ). Lässt man bei der Grenzwertbildung in (53) zuerst diese Summe gegen Null gehen, so erhält man

$$\tilde{T}(p_1, \dots, p_n) = 0 \quad \text{für} \quad (p_{k+1} + \dots + p_n)^2 < 0, \quad (54)$$

weil in diesem Fall der betrachtete Grenzpunkt noch ein Regularitätspunkt ist (da  $\in \mathfrak{R}'_{\mu \uparrow \nu}$ ) und somit die verschiedene Art des Grenzübergangs in den beiden Termen keine Rolle spielt. Damit ist auch d) verifiziert.

### 8. Schlussbemerkungen

Wir haben notwendige und hinreichende Bedingungen dafür abgeleitet, dass zu einer vorgegebenen  $r$ -Funktion die zugehörige  $W$ -Funktion existiert. Insbesondere haben wir ein Gebiet  $\overline{\mathfrak{R}}_n$  angegeben, in dem  $\tilde{r}(k_1, \dots, k_n)$  regulär sein muss. Zu diesem Gebiet sollen hier noch einige Bemerkungen gemacht werden.

Auf Grund der in A gegebenen Resultate für die Vierpunkt-Funktion hätte man Regularität von  $\tilde{r}(k_1, \dots, k_n)$  im Gebiet

$$\mathfrak{D}' = \bigcup_{A \in L_+^{(C)}} A \mathfrak{D} \quad (55)$$

erwarten können, wobei  $\mathfrak{D}$  die durch die Bedingung

$$\left( \sum_{j \in I} q_j \right)^2 > 0 \quad \text{für alle Teilmengen } I \text{ aus } (1, \dots, n) \quad (56)$$

charakterisierte Röhre darstellt. Wie D. RUELLÉ<sup>5)</sup> gezeigt hat, ist  $\mathfrak{D}'$  für  $n > 3$  grösser als  $\overline{\mathfrak{R}}_n$ . Es enthält nämlich auch Röhren der am Anfang

von § 4 betrachteten Art, die nicht durch eine aus nur  $n$  Elementen bestehende Basis der Form (36) festgelegt sind.

Wir haben jedoch nur Regularität in  $\mathfrak{R}_n$  gefunden. Das hat zur Folge, dass der im Falle  $n = 3$  bestehende Zusammenhang zwischen  $\tilde{r}$  und der Fouriertransformierten  $\tilde{\tau}$  von

$$\tau(\xi_1, \dots, \xi_n) = \langle TA(x_0, \dots, x_n) \rangle_0 \tag{57}$$

mit den hier entwickelten Hilfsmitteln im allgemeinen Fall nicht mehr bewiesen werden kann. D. h.  $\tilde{\tau}(p_1, \dots, p_n)$  ist nicht unbedingt überall Randwert der Funktion  $\tilde{r}(k_1, \dots, k_n)$ . Es ist jedoch zu beachten, dass  $\overline{\mathfrak{R}_n}$  (auch nach Bildung der Holomorphiehülle) keineswegs das vollständige Regularitätsgebiet von  $\tilde{r}$  zu sein braucht. Es ist anzunehmen, dass die in § 6 betrachteten Identitäten das Regularitätsgebiet noch vergrössern, wie in A für den Spezialfall  $n = 3$  bewiesen wurde. Die zitierte Arbeit von D. RUELE, in der nur die 0-Komponenten der  $p_i$  als komplexe Variable betrachtet werden, scheint tatsächlich darauf hinzudeuten, dass eine analytische Fortsetzung von  $\tilde{r}$  in  $\mathfrak{D}'$  möglich ist.

Ein grosser Teil dieser Arbeit entstand während eines Aufenthaltes des Autors am Institut für Theoretische Physik der Universität Hamburg. Für die ihm dort erwiesene Gastfreundschaft möchte er Herrn Prof. H. LEHMANN herzlich danken. Die Arbeit wurde durch ein Nachwuchsstipendium des Schweizerischen Nationalfonds unterstützt.

### Anhang: Beweis des in § 4 verwendeten Lemmas

Das zu beweisende Lemma lautet:

Sei  $G(x_0, \dots, x_n) \in \mathfrak{G}_n$ . Wir lassen in allen Summanden (19) die Variable  $x_f$  ( $1 \leq f \leq n$ ) weg und erhalten so einen Operator  $G^f(x_0, \dots, x_{f-1}, x_{f+1}, \dots, x_n)$ . Dann ist  $G^f \in \mathfrak{G}_{n-1}$  und  $\mathfrak{R}_{G^f}$  ergibt sich aus  $\mathfrak{R}_G$  durch Weglassen der  $q_f$  enthaltenden Bedingungen.

Beweis:

A) Sei  $G(x_0, \dots, x_n) = G_\alpha(x_0, \dots, x_k) \updownarrow G_\beta(x_{k+1}, \dots, x_n)$ ,  $1 \leq f \leq k$ . Das Lemma gelte für  $G_\alpha$ . Dann gilt es offensichtlich auch für  $G$  mit

$$G^f = G_\alpha^f \updownarrow G_\beta. \tag{A.1}$$

B) Sei

$$G(x_0, \dots, x_n) = A(x_0) \updownarrow G_\alpha(x_1, \dots, x_n). \tag{A.2}$$

Wir betrachten den Operator  $\overline{G}^f(x_0, \dots, x_{f-1}, x_{f+1}, \dots, x_n)$ , der aus  $\overline{G}_\alpha(x_1, \dots, x_n)$  durch die Substitution  $x_f \rightarrow x_0$  entsteht.  $\overline{G}^f$  gehört natürlich zu  $\mathfrak{G}_{n-1}$ , und das Regularitätsgebiet der zugehörigen Funktion  $\tilde{\overline{g}}^f$  ergibt sich aus  $\mathfrak{R}_\alpha$  durch die Ersetzung  $q_f \rightarrow q_0$  in allen Bedingungen. Die Bedingungen für die  $q_f$  nicht enthaltenden Summen werden davon nicht berührt.

Es ist aber

$$\overline{G^f} \equiv G^f. \quad (\text{A.})$$

Zum Beweis betrachten wir einen typischen Term aus  $G_\alpha$ , wobei wir speziell den Fall  $\uparrow x_f$  annehmen (resp.  $x_1 \downarrow x_2$  für  $f = 1$ . Der andere Fall  $\downarrow x_f$  resp.  $x_1 \uparrow x_2$  lässt sich genau gleich behandeln):

$$A(x_1 \uparrow x_2 \uparrow \dots \uparrow x_f \dots \uparrow x_n) \quad (\text{A.4})$$

Adjunktion dieses Terms zu  $A(x_0)$  ergibt in der bekannten Weise Ausdrücke der Form  $A(x_0 \uparrow x_{i_1} \uparrow \dots \uparrow x_f \dots \uparrow x_{i_n})$ . Beim Weglassen der Variablen  $x_f$  bleiben nur die Glieder

$$A(x_0 \downarrow x_{i_1} \uparrow \dots \uparrow x_{i_{n-1}}), \quad i_1 < f \text{ (resp. } i_1 = 2 \text{ im Fall } f = 1)$$

stehen, da sich die übrigen paarweise wegheben. Man erhält damit

$$\begin{aligned} & (A(x_0) \uparrow A(x_1 \uparrow \dots \uparrow x_n))^f = \\ & = (A(x_0) \downarrow A(x_1 \uparrow \dots \uparrow x_{f-1})) \uparrow A(x_{f+1}) \uparrow \dots \uparrow A(x_n). \end{aligned} \quad (\text{A.5})$$

Für  $f = 1$  lautet die rechte Seite  $A(x_0) \downarrow A(x_2) \dots$

Andererseits erhält man bei Bildung von  $\overline{G^f}$  aus dem Term (A.4) den Ausdruck

$$\begin{aligned} & A(x_1 \uparrow x_2 \dots x_{f-1} \uparrow x_0 \uparrow x_{f+1} \dots x_n) = \\ & = (A(x_0) \downarrow A(x_1 \uparrow \dots \uparrow x_{f-1})) \uparrow x_{f+1} \dots \uparrow x_n \end{aligned}$$

nach (30), also dasselbe wie in (A.5), womit (A.3) bewiesen ist. Das Lemma gilt somit im betrachteten Spezialfall.

C) Sei  $G = G_\alpha(x_0, \dots, x_k) \uparrow G_\beta(x_{k+1}, \dots, x_n)$ ,  $f > k$ . Vergleichsweise betrachten wir

$$G'(x_0, x_{k+1}, \dots, x_n) = A(x_0) \uparrow G_\beta(x_{k+1}, \dots, x_n) \quad (\text{A.6})$$

$G'^f$  besteht aus Summanden der Form

$$A(x_0) \uparrow A(x_{i_{k+1}}) \uparrow \dots \uparrow A(x_{i_n}). \quad (\text{A.7})$$

Analog bilden wir  $G^f$ , indem wir in (A.7)  $A(x_0)$  durch  $G_\alpha$  ersetzen. Da  $G'^f \in \mathfrak{G}_{n-k-1}$ , liegt das analog gebildete  $G^f$  in  $\mathfrak{G}_{n-1}$ . Es ist klar, dass das so definierte  $G^f$  der nach den Vorschriften des Lemmas gebildete Operator ist. Dass sich dabei das richtige Regularitätsgebiet ergibt, ist einfach zu sehen. Die Vorschriften innerhalb  $I_\alpha$  bleiben ja bestehen, und die übrigen Vorschriften ergeben sich in voller Analogie zu  $G'^f$ .

### Literaturverzeichnis

- <sup>1)</sup> O. STEINMANN, Helv. Phys. Acta 33, 257 (1960).
- <sup>2)</sup> A. S. WIGHTMAN, Phys. Rev. 107, 860 (1956).
- <sup>3)</sup> D. HALL und A. S. WIGHTMAN, Dan. Vid. Sels. mat. fys. Medd. 31, Nr. 5 (1957).
- <sup>4)</sup> R. JOST, Helv. Phys. Acta 30, 409 (1957).
- <sup>5)</sup> D. RUELLE, Thèse, Université libre de Bruxelles, 1959.

# Über Zweiquanten-Übergänge an $\text{Ba}^{137}$

von W. Beusch

Physikalisches Institut der ETH, Zürich

(26. III. 1960)

*Abstract.* According to second-order perturbation theory, transitions in nuclear isomers should occur for which two quanta are emitted with arbitrarily divided energies. The transition probability for such a process has been calculated for  $\text{Ba}^{137\text{m}}$  for various multipole transition combinations. The dependence of transition probability upon energy for electric multipole transitions differs from that for magnetic.

Experimental coincidence measurements have been undertaken using high time resolution and two-dimensional pulse analysis. Corrections were determined for random coincidences and for contamination activity. The probability for emission of two Bremsstrahlung quanta was calculated; it was found to be negligibly small.

The measured ratio of transition probabilities for first and for second order processes was

$$T^{(2)} : T^{(1)} = (6,4 \pm 3,1) \times 10^{-6}.$$

This value is approximately 10 times smaller than that expected from a theoretical estimate.

## 1. Einleitung

Für die Emission oder Absorption von Quanten der elektromagnetischen Strahlung besteht seit der Entdeckung der Gesetze der Quantenmechanik eine wohlfundierte Theorie. Die Wechselwirkung des elektromagnetischen Feldes mit einem materiellen System von bewegten Ladungen ist sehr gut bekannt. Die theoretischen Voraussagen für Emission oder Absorption von Photonen sind also im wesentlichen so genau wie die Kenntnis der quantenmechanischen Eigenschaften des materiellen Systems.

Diese theoretischen Voraussagen (Emissionswahrscheinlichkeit, Linienbreite usw.) werden nach einem Näherungsverfahren, der Diracschen Störungsrechnung gewonnen. Die Näherung besteht im wesentlichen in einer Entwicklung nach Potenzen der Wechselwirkungsenergie (genauer: nach Potenzen der Kopplungskonstanten  $e^2/\hbar c$ ). Allerdings beschreibt hier jedes Glied dieser «Potenzreihe» einen anderen Vorgang: in der ersten Ordnung werden Prozesse mit Entstehen oder Vernichten von *einem* Photon, in der zweiten solche mit *zwei* Photonen usw. beschrieben. Das von Null verschiedene Glied niedrigster Ordnung liefert im allgemeinen



die richtige Aussage über einen bestimmten Prozess. Strahlungsprozesse höherer Ordnung sind sicher in jedem Fall vorhanden; die Theorie liefert aber dafür einen um Größenordnungen kleineren Beitrag und in einem Experiment werden sie von der überwiegenden Zahl der Prozesse niedrigster Ordnung überdeckt.

Ein Versuch, solche Strahlungsprozesse höherer Ordnung einmal nachzuweisen, ist demnach von einem gewissen Interesse. Er würde eine Bestätigung der Theorie geben und ausserdem noch weitere Information, z. B. über höher liegende Energieniveaux des materiellen Systems, liefern.

Solche Prozesse wurden zuerst von M. GOEPPERT-MAIER theoretisch vorausgesagt und ihre Wahrscheinlichkeit in Dipolnäherung berechnet. Es wurde festgestellt, dass der damals schon experimentell bekannte Raman-Effekt formal gleich behandelt werden kann<sup>1)2)</sup>.

In der Physik der Atomhülle konnten die Strahlungsprozesse zweiter Ordnung noch nicht festgestellt werden, und es besteht auch wenig Hoffnung, dass dies je geschehen wird, sind doch schon die «verbotenen Übergänge» vom Typ M1 oder E2 im Laboratorium nicht nachzuweisen. Der Grund liegt darin, dass ein angeregter Zustand seine Energie vorwiegend durch strahlungslose Stossprozesse verliert, wenn die Wahrscheinlichkeit für den Strahlungsprozess klein ist.

Bei Hochfrequenz-induzierten Übergängen zwischen Hyperfeinstrukturniveaux konnte tatsächlich eine Zweiquantenabsorption gefunden werden<sup>3)4)</sup>, dieser Effekt betrifft aber die Absorption und einen ganz anderen Energiebereich als der hier untersuchte Prozess.

Im Atomkern wird die Situation für den Nachweis günstiger, existieren hier doch angeregte Zustände, die nur durch hochgradig verbotene Einquantenübergänge zerfallen können. Als Konkurrenzprozesse treten hier innere Konversion und eventuell innere Paarbildung auf.

Bei einem  $0^+-0^-$ -Übergang sind auch innere Konversion und innere Paarzeugung streng verboten<sup>5)</sup>, möglich ist nur noch gleichzeitige Emission von 2  $\gamma$ -Quanten, von 2 Elektronen oder von einem Quant und einem Elektron. Leider kennt man aber bisher noch keinen Fall, wo ein Kern nur durch  $0^+-0^-$ -Übergang Quanten emittiert.

Bei einem  $0^+-0^+$ -Übergang ist zwar die Einquanten-Emission immer noch streng verboten, innere Konversion (Monopol-Übergang) und eventuell innere Paarbildung sind aber möglich. Diese angeregten Zustände haben deshalb im Gebiet von 1,5 MeV nur eine Lebensdauer von der Größenordnung  $10^{-8}$  sec. Störend für einen experimentellen Nachweis sind hier die Annihilationsstrahlung als Folge der inneren Paarbildung und  $\gamma$ -Quanten aus anderen angeregten Zuständen. Für den Nachweis günstig wäre der  $0^+-0^+$ -Übergang in  $\text{Zr}^{90}$ . Der angeregte Zustand entsteht durch  $\beta$ -Zerfall aus  $\text{Y}^{90}$  mit einem Verzweungsverhältnis von

$2,24 \cdot 10^{-2} \%$ . Es treten keine  $\gamma$ -Quanten auf. Ungünstig ist hier allerdings die kurze Lebensdauer von  $64 \text{ h}$  des  $\text{Y}^{90}$ )<sup>6)</sup>.

Für das vorliegende Experiment wurde ein Übergang verwendet, der für die Einquanten-Emission zwar nicht verboten, wegen der grossen Drehimpulsänderung im Kern aber stark verlangsamt ist. Die beiden Quanten im höheren Prozess können dann je von niedrigerer Multipolordnung sein, so dass es möglich sein könnte, die Zweiquantenemission hier nachzuweisen. Im Experiment ist das durch Koinzidenzmessung möglich, wenn im untersuchten Kern keine anderen  $\gamma$ -Quanten in Koinzidenz auftreten.

Es wurde das 156-sec-Isomer  $\text{Ba}^{137*}$  verwendet, das durch  $\beta$ -Zerfall aus  $\text{Cs}^{137}$  entsteht. Das metastabile Niveau zerfällt über einen M4-Übergang in den Grundzustand, die  $\gamma$ -Energie ist 661 keV. Eine Abschätzung der Übergangswahrscheinlichkeit für Zweiquantenemission, bezogen auf den M4-Übergang, folgt im nächsten Abschnitt.

Unter den bisherigen Versuchen zum Nachweis der Zweiquantenemission an Atomkernen ist mir nur eine kurze Mitteilung von GOLDHABER<sup>7)</sup> aus dem Jahre 1947 bekannt. Es wird dort die Vermutung ausgesprochen, dass bei der durch Neutronenbestrahlung angeregten 1,5-min-Aktivität von natürlichem Iridium die beobachteten weichen  $\gamma$ -Quanten durch Zweiquanten-Zerfall zu erklären seien. Das Experiment, bei dem die  $\gamma$ -Energien durch kritische Absorption gemessen wurden, lässt aber keine eindeutigen Schlüsse zu. Die beobachteten weichen Quanten könnten sehr wohl von anderen Übergängen in den komplexen Niveauschemata der Ir-Isotope herkommen.

Im Anschluss an diese Arbeit hat GOLDBERGER<sup>8)</sup> die Übergangswahrscheinlichkeit für Zweiquanten-Emission für den Fall eines  $0^+-0^-$ -Übergangs in diesem Isomer abgeschätzt\*). Er stützte sich dabei auf eine frühere Arbeit von SACHS<sup>5)</sup> der die  $0^+-0^-$ -Übergänge zur Erklärung der Isomere vorgeschlagen hatte. Weitere, nicht sehr ausführliche, theoretische Behandlungen dieses Effekts findet man bei DALITZ<sup>9)</sup> und OPPENHEIMER und SCHWINGER<sup>10)</sup>.

Nachdem eine Abschätzung für den hier betrachteten Fall vorhanden und die Messungen schon im Gange waren, erschien eine ausführliche theoretische Arbeit über dieses Problem<sup>11)</sup>. Darin wurden alle Multipolordnungen berücksichtigt und auch Spektren und Winkelverteilungen angegeben. Diese Arbeit bestätigte die Richtigkeit der für dieses Experiment ausgeführten Abschätzung\*\*).

\*) Man weiss heute, dass es sich um einen E3-Übergang handelt.

\*\*) Seit diese Arbeit zur Veröffentlichung eingesandt worden ist, haben andere Autoren eine Messung des gleichen Prozesses an  $\text{Xe}^{131}$  beschrieben: T. ALVÄGER und H. RYDE, Arkiv f. Fysik 17, 535 (1960). Sie finden einen deutlich sichtbaren Effekt. Es wird hier allerdings die gleichzeitige Emission von einem  $\gamma$ -Quant und einem X-Quant aus der Konversion oder zwischen zwei X-Quanten festgestellt.

## 2. Theorie

Es soll hier die Übergangswahrscheinlichkeit für Zweiquantenemission bei beliebiger Multipolordnung des einfachen Zerfalls diskutiert werden. Die Spektren der  $\gamma$ -Quanten beim Prozess zweiter Ordnung sind unabhängig von den Kerneigenschaften; sie werden für einen repräsentativen Fall berechnet. Für den gleichen Fall sollen die Übergangswahrscheinlichkeiten für erste und zweite Ordnung mit Hilfe des Einteilchenmodells verglichen werden. Es wird diskutiert, wie weit diese Abschätzung zuverlässig ist.

Die Berechnung der Übergangswahrscheinlichkeiten für den einfachen  $\gamma$ -Zerfall wurde dem Artikel von MOSKOWSKI<sup>12)</sup> entnommen. Die Bezeichnungen sind im wesentlichen diejenigen von ALDER, BOHR *et al.*<sup>13)</sup>.

a) *Matrizelemente und Übergangswahrscheinlichkeiten.* Das elektromagnetische Feld sei durch sein Vektorpotential  $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$  beschrieben. Es wird nach einem orthonormalen System von transversalen elektrischen bzw. magnetischen Eigenschwingungen zerlegt, die ein Drallmoment  $\lambda$  eine magnetische Quantenzahl  $\mu$  und eine Energie  $\hbar \cdot c \cdot k$  besitzen:

$$\left. \begin{aligned} \mathbf{A}_{k\lambda\mu}^E &= \sqrt{\frac{8\pi c^2}{\lambda(\lambda+1)R}} \operatorname{rot} \mathbf{L} j_\lambda(kr) Y_{\lambda\mu}(\vartheta, \varphi) \\ \mathbf{A}_{k\lambda\mu}^M &= ik \sqrt{\frac{8\pi c^2}{\lambda(\lambda+1)R}} \mathbf{L} j_\lambda(kr) Y_{\lambda\mu}(\vartheta, \varphi) \end{aligned} \right\} \quad (2.1)$$

Darin bedeuten  $\mathbf{L} = -i \cdot \mathbf{r} \times \operatorname{grad}$  den Drehimpulsoperator,  $j_\lambda(kr)$  die sphärische Besselfunktion und  $Y_{\lambda\mu}(\vartheta, \varphi)$  die normalisierten Kugelfunktionen in der Definition von CONDON und SHORTLEY<sup>14)</sup>.

Die Zahl der Eigenschwingungen pro Intervall der Wellenzahl  $dk$  bzw. der Energie  $dE$  ist dann

$$\frac{dN}{dk} = \frac{R}{\pi}, \quad \frac{dN}{dE} = \frac{R}{\pi \hbar c} \quad (2.2)$$

Für einen Übergang von einem Kernzustand  $|1\rangle$  zu einem anderen  $\langle 2|$  erhält man die folgenden Matrizelemente der elektrischen bzw. magnetischen Wechselwirkung

$$H'_{1 \rightarrow 2}(E) = \sqrt{\frac{4\pi \hbar (\lambda+1)}{R \lambda \omega}} \frac{\hbar \lambda}{(2\lambda+1)!!} \frac{E_1 - E_2}{\hbar} \langle 2 | \mathfrak{M}(E \lambda \mu) | 1 \rangle \quad (2.3)$$

$$H'_{1 \rightarrow 2}(M) = \sqrt{\frac{4\pi \hbar (\lambda+1)}{R \lambda \omega}} \frac{\hbar \lambda}{(2\lambda+1)!!} \hbar \cdot c \langle 2 | \mathfrak{M}(M \lambda \mu) | 1 \rangle \quad (2.4)$$

$\mathfrak{M}(E \lambda \mu)$ ,  $\mathfrak{M}(M \lambda \mu)$  sind die Multipoloperatoren für elektrische bzw. magnetische Übergänge mit den Quantenzahlen  $\lambda$  und  $\mu$  des Photons<sup>12)</sup>. Die Kern-Matrizelemente  $\langle 2 | \mathfrak{M} | 1 \rangle$  hängen, ausser der Multipolordnung nur von den Eigenschaften des Kerns ab, die übrigen Faktoren in

$H'_{1 \rightarrow 2}$  sind, mit einer Ausnahme, durch die Eigenschaften des emittierten Photons bestimmt.

Die genannte Ausnahme betrifft den Faktor  $E_1 - E_2$ , der die Energiedifferenz zwischen den Kernzuständen vor und nach dem Zerfall darstellt. Beim Prozess erster Ordnung ist diese gerade gleich der Energie des  $\gamma$ -Quants, beim Zweiquantenübergang ist dies nicht mehr der Fall. Dieser Faktor tritt nur beim elektrischen Übergang auf. (Siehe auch EICHLER und JACOB<sup>11</sup>).

Es ist an dieser Stelle von Interesse, die Herkunft dieses Energiefaktors etwas zu verfolgen. Der Operator der Wechselwirkung zwischen einem System von bewegten Ladungen, das durch die Stromdichte  $\mathbf{j}$  beschrieben sei und dem elektromagnetischen Feld  $\mathbf{A}$  ist allgemein

$$H' = -\frac{1}{c} \int \mathbf{j} \cdot \mathbf{A} \, d\tau$$

Für  $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$  ist eine Entwicklung nach dem Funktionssystem (2.1) einzusetzen. In der Näherung  $k \cdot \mathbf{r} \ll 1$  gilt

$$\text{rot } \mathbf{L} \mathbf{j}_{\lambda}(kr) Y_{\lambda\mu}(\vartheta, \varphi) = i(\lambda + 1) \text{grad} \frac{(kr)^{\lambda}}{(2\lambda + 1)!!} Y_{\lambda\mu}(\vartheta, \varphi) = \text{grad } F(r, \vartheta, \varphi)$$

Der Wechselwirkungsoperator ist also proportional zu

$$\int \mathbf{j} \cdot \text{grad } F(r, \vartheta, \varphi) \, d\tau$$

Eine partielle Integration liefert

$$\int \mathbf{j} \cdot \text{grad } F(r, \vartheta, \varphi) \, d\tau = - \int \text{div } \mathbf{j} \cdot F(r, \vartheta, \varphi) \, d\tau$$

Nach der Kontinuitätsgleichung gilt

$$\text{div } \mathbf{j} = - \frac{d\rho}{dt}$$

Der Operator der Ladungsdichte  $\rho$  wirkt nur auf die Kern-Wellenfunktionen und ist nicht explizit zeitabhängig. Das Matrixelement ist also

$$\langle 2 | \frac{d\rho}{dt} | 1 \rangle = \frac{i}{\hbar} (E_1 - E_2) \langle 2 | \rho | 1 \rangle$$

wobei  $E_1$  und  $E_2$  nun offensichtlich Kernenergien sind. Beim magnetischen Matrixelement tritt keine derartige zeitliche Differentiation auf; hingegen enthält die Normierungskonstante des  $\mathbf{A}_{k\lambda\mu}^M$  (4.1) einen Faktor  $\hbar$ , der bei  $\mathbf{A}_{k\lambda\mu}^E$  fehlt.

Nach der Diracschen Störungsrechnung ist die totale Übergangswahrscheinlichkeit pro Zeiteinheit

$$T_{i \rightarrow f} = \frac{2\pi}{\hbar} \rho | H'_{i \rightarrow f} |^2 \quad (2.5)$$

wobei  $\varrho = dN/dE$  die Zustandsdichte für den Endzustand ist. Einsetzen von Gl. (2.2), (2.3) und (2.4) liefert für die *Einquantenemission*

$$T_{i \rightarrow f}^{(1)} = \frac{8\pi}{\hbar} \frac{\lambda+1}{\lambda} \frac{k^2 \lambda + 1}{(2\lambda+1)!!} |\langle f | \mathfrak{M} | i \rangle|^2 \quad (2.6)$$

Beim *Übergang zweiter Ordnung* tritt

$$\left| \sum_z \frac{H'_{i \rightarrow z} \cdot H'_{z \rightarrow f}}{E_i - E_z} \right|^2$$

an die Stelle von  $H'_{i \rightarrow f}$ . Es ist aber noch weiter zu beachten, dass Gleichung (2.5) das Resultat einer Integration über alle Endzustände darstellt, aus der die Erhaltung der Energie hervorgeht. Beim Prozess zweiter Ordnung treten zwei Photonen auf, es ist demnach zweifach zu integrieren. Im Endzustand ist die Energie erhalten; eine Integration über alle Endzustände liefert die Beziehung

$$E_i - E_f = \hbar c (k_1 + k_2) \quad (2.7)$$

Der Zwischenzustand  $|z\rangle$  wird dagegen nur virtuell erreicht; der Energiesatz gilt nicht und die Anregungsenergie  $E_i - E_f$  kann beliebig auf die beiden Photonen verteilt werden.

Damit die folgenden Formeln nicht allzu schwerfällig werden, soll im folgenden nur *ein* Zwischenzustand  $|z\rangle$  betrachtet werden. Es sei mit  $E$  die Gesamtenergie eines Zustandes, mit  $\hbar\omega$  die Energie des Kerns und mit  $\hbar \cdot c \cdot k$  die Energie eines  $\gamma$ -Quants bezeichnet. Für die drei auftretenden Zustände gilt dann

$$\left. \begin{aligned} E_i &= \hbar \omega_i \\ E_z &= \hbar \omega_z + \hbar c k_1 \\ E_f &= \hbar \omega_f + \hbar c k_1 + \hbar c k_2 \end{aligned} \right\} \quad (2.8)$$

Als Abkürzung sei  $\hbar(\omega_i - \omega_f) = \hbar\omega_0$  gesetzt.

Die Integration über das Kontinuum des Zwischenzustandes  $|z\rangle$ , d. h. Integration über  $k_1$  liefert dann nach Einsetzen der Matrixelemente (2.3) und (2.4)

$$T_{i \rightarrow f}^{(2)} = \frac{32\pi}{\hbar^2} \frac{(\lambda_1+1)(\lambda_2+1)}{\lambda_1 \lambda_2 [(2\lambda_1+1)!!]^2 [(2\lambda_2+1)!!]^2} |\langle i | \mathfrak{M}(1) | z \rangle \langle z | \mathfrak{M}(2) | f \rangle|^2 \\ \times \left( \frac{\omega_\sigma}{c} \right)^2 \int_0^{\omega_0/c} \frac{k_1^{\mu_1} \left( \frac{\omega_0}{c} - k_1 \right)^{\mu_2}}{(\omega_i - \omega_z - ck_1)^2} c dk_1 \quad (2.9)$$

Dabei ist angenommen, dass einer der beiden Übergänge vom elektrischen Typ ist.



Wären beide Übergänge elektrisch (im vorliegenden Fall z. B.  $E2 + E3$ ), so würde  $T_{i \rightarrow f}$  einen Faktor

$$\left( \frac{\omega \delta_1}{c} \right)^2 \left( \frac{\omega \delta_2}{c} \right)^2$$

enthalten. Die Übergangswahrscheinlichkeit wäre dann angenähert proportional zu

$$\left| \sum_z \langle i | \mathfrak{M}(1) | z \rangle \langle z | \mathfrak{M}(2) | f \rangle \frac{(\omega_i - \omega_z)(\omega_z - \omega_f)}{(\omega_i - \omega_z - ck_1)} \right|^2$$

Beachtenswert ist dabei, dass insgesamt ein Faktor  $\sim \omega_z^2$  im Zähler auftritt. Die Exponenten  $\mu_1$  und  $\mu_2$  und die Grösse  $\omega_\sigma$  sind durch den Typ der Multipoloperatoren  $\mathfrak{M}(1)$  und  $\mathfrak{M}(2)$  bestimmt. Ihre Werte sind in der weiter unten folgenden Tabelle 1 aufgeführt.

Das Integral (2.9) kann durch Einführung von dimensionslosen Variablen noch etwas vereinfacht werden. Es seien

$$\xi = \frac{ck_1}{\omega_0} \quad \zeta = \frac{\omega_z - \omega_i}{\omega_0}$$

dann wird (2.9)

$$T_{i \rightarrow f}^{(2)} = \frac{32 \pi}{\hbar^2 c} \frac{(\lambda_1 + 1)(\lambda_2 + 1)}{\lambda_1 \lambda_2 [(2\lambda_1 + 1)!!]^2 [(2\lambda_2 + 1)!!]^2} \left( \frac{\omega_0}{c} \right)^{2(\lambda_1 + \lambda_2) - 1} \left( \frac{\omega_\sigma}{c} \right)^2 \left\{ \right. \quad (2.10)$$

$$\times |\langle i | \mathfrak{M}(1) | z \rangle \langle z | \mathfrak{M}(2) | f \rangle|^2 \cdot \int_0^1 \left[ \frac{\xi^{\mu_1} (1 - \xi)^{\mu_2}}{(\zeta + \xi)^2} + \frac{(1 - \xi)^{\mu_1} \xi^{\mu_2}}{(\zeta + 1 - \xi)^2} \right] d\xi \left. \right\}$$

$\xi$  ist proportional der Energie des ersten emittierten  $\gamma$ -Quants. Weil die beiden Quanten aber nicht unterscheidbar sind, wurde unter dem Integral der symmetrische Ausdruck hinzu addiert.

b) *Auswahlregeln und höhere Niveaux.* Beim Kern des Ba<sup>137</sup>, das im vorliegenden Experiment untersucht wurde, sind Spin und Parität von Grund- und metastabilem Zustand mit grosser Sicherheit bekannt ( $3/2^+$  bzw.  $11/2^-$ ), der Zerfall geht über einen reinen  $M4$ -Übergang mit einem totalen Konversionskoeffizienten  $\alpha = 0,114^{15}$ ). Die Zweiquanten-Emission ist natürlich für die niedrigsten möglichen Multipolordnungen, d. h.  $\lambda_1 + \lambda_2 = 4$  am wahrscheinlichsten. Wir müssen also die folgenden Kombinationen von Multipolen betrachten:

$$E2 + M2, \quad M2 + E2, \quad E1 + M3, \quad M3 + E1, \quad M1 + E3, \quad E3 + M1.$$

Bei allen diesen Kombinationen beträgt die Änderung des Drehimpulses 4 Einheiten und die Parität ist ungerade.

Von den höheren Niveaux des Ba<sup>137</sup> haben SWANN und METZGER<sup>16)</sup> einige Angaben machen können. Sie fanden aus der Anregungskurve für den  $(n, n'\gamma)$ -Prozess drei Niveaux von 1,05, 1,78 und 2,18 MeV, welche

auf das isomere Niveau von 0,661 MeV zerfallen. Über Spin und Parität der höheren Niveaux ist nichts bekannt.

FAGG<sup>17)</sup> hat durch Coulomb-Anregung mit  $\alpha$ -Teilchen ein Niveau bei 0,281 MeV gefunden, das wahrscheinlich einen Spin  $I = 1/2^+$  besitzt. Dieses kann aber für die Zweiquantenemission nichts beitragen.

c) *Numerische Rechnungen.* Das Integral der Gleichung (2.10) kann elementar gelöst werden, das Resultat ist aber für eine numerische Auswertung ungünstig, weil es eine Differenz zwischen grossen Zahlen liefert (siebenstellige Logarithmen notwendig). Wenn man die beiden Summanden zusammenfasst und die Substitution  $x = 2\xi - 1$ ;  $z = 2\zeta + 1$  verwendet, so wird (2.10)

$$\begin{aligned} & \int_0^1 \left[ \frac{\xi^{\mu_1} (1-\xi)^{\mu_2}}{(\zeta+\xi)^2} + \frac{(1-\xi)^{\mu_1} \xi^{\mu_2}}{(\zeta+1-\xi)^2} \right] d\xi \\ &= \left(\frac{1}{2}\right)^{\mu_1+\mu_2-1} \int_{-1}^{+1} \frac{(1-x)^{\mu_1} (1+x)^{\mu_2} (z+x)^2 + (1+x)^{\mu_1} (1-x)^{\mu_2} (z-x)^2}{(z^2-x^2)^2} dx \\ &= \left(\frac{1}{2}\right)^{\mu_1+\mu_2-1} \frac{1}{z^4} \int_0^1 [(1-x)^{\mu_1} (1+x)^{\mu_2} (z+x)^2 + (1+x)^{\mu_1} (1-x)^{\mu_2} (z-x)^2] \\ & \quad \left(1 + 2 \frac{x^2}{z^2} + 3 \frac{x^4}{z^4} + \dots\right) dx \end{aligned} \quad (2.11)$$

Dieses Integral kann nun bequem ausgewertet werden. Wenn man noch daran erinnert, dass  $\hbar\omega_\sigma$  die Energiedifferenz der Kernzustände beim elektrischen Übergang darstellt, so folgen für die 6 zu betrachtenden Fälle die Angaben der Tabelle 1.

Tabelle 1

Art des Übergangs	$\mu_1$	$\mu_2$	$\frac{\omega_\sigma}{\omega_0}$	Integral aus (2.10)
$E2 + M2$	3	5	$\zeta$	$0.0159 \left( \frac{1}{z^2} + \frac{0.40}{z^3} + \frac{0.38}{z^4} + \dots \right)$
$M2 + E2$	5	3	$1 + \zeta$	$0.0159 \left( \frac{1}{z^2} - \frac{0.40}{z^3} + \frac{0.38}{z^4} - \dots \right)$
$E1 + M3$	1	7	$\zeta$	$0.111 \left( \frac{1}{z^2} + \frac{1.45}{z^3} + \frac{1.25}{z^4} + \dots \right)$
$M3 + E1$	7	1	$1 + \zeta$	$0.111 \left( \frac{1}{z^2} - \frac{1.45}{z^3} + \frac{1.25}{z^4} + \dots \right)$
$E3 + M1$	5	3	$\zeta$	$0.0159 \left( \frac{1}{z^2} - \frac{0.40}{z^3} + \frac{0.38}{z^4} - \dots \right)$
$M1 + E3$	3	5	$1 + \zeta$	$0.0159 \left( \frac{1}{z^2} + \frac{0.40}{z^3} + \frac{0.38}{z^4} + \dots \right)$

Die Energieverteilung eines der beiden Quanten ist durch den Integranden in (2.10) gegeben. Sie ist in der folgenden Figur 1 dargestellt. Der Maßstab ist so gewählt, dass die Fläche unter dem Spektrum immer

gleich der Einheit ist. Die Spektren hängen noch von der Energie des Zwischenzustandes ab. Für die Berechnung wurde angenommen, dass nur ein Zwischenzustand mit  $\zeta = 2$ , also  $\omega_z - \omega_f = 3 (\omega_i - \omega_f)$  beiträgt. Für Zwischenzustände mit höherer Energie würde der Unterschied bei verschiedener Reihenfolge der gleichen Multipole immer mehr verschwinden.

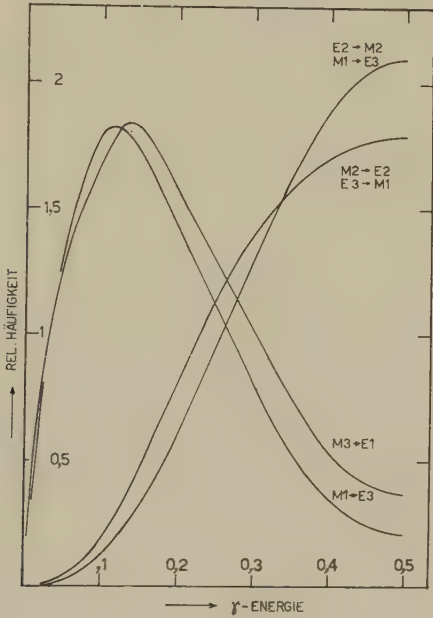


Fig. 1

Spektren der bei einem M4-Isomer möglichen 2-Quanten-Übergänge. Die Kurven sind auf Fläche = 1 normiert, die Einheit des Energiemaßstabes ist  $E_i - E_f$ . Für die Berechnung wurde ein Zwischenniveau der Energie  $E_z$  angenommen, mit  $E_z - E_f = 3 (E_i - E_f)$

d) Abschätzung des Verhältnisses  $T^{(2)}:T^{(1)}$ . Aus den Gleichungen (2.6), (2.10), und (2.11) kann das Verhältnis der Übergangswahrscheinlichkeiten gebildet werden.

$$\frac{T^{(2)}}{T^{(1)}} = \frac{4}{T^{(1)}} \cdot \frac{\lambda}{\hbar c} \cdot \frac{\lambda_1 + 1}{\lambda_1} \cdot \frac{\lambda_2 + 1}{\lambda_2} \cdot \frac{[(2\lambda + 1)!!]^2}{[(2\lambda_1 + 1)!!]^2 [(2\lambda_2 + 1)!!]^2} \left( \frac{\omega\sigma}{\omega_0} \right)^2 \times J \cdot \frac{|\langle i | \mathfrak{M}(1) | z \rangle \langle z | \mathfrak{M}(2) | f \rangle|^2}{|\langle i | \mathfrak{M}(M4) | f \rangle|^2} \quad (2.12)$$

vorin  $\lambda$  die Multipolordnung des einfachen Zerfalls und  $J$  das Integral der Gleichung (2.10) (Tabelle 1) bedeutet.

Die Matrixelemente für die einzelnen Übergänge hängen ausser der Multipolordnung  $\lambda_{1,2}$  nur von den Eigenschaften des Kerns ab. Für die

vorliegende Abschätzung werden die Werte des Einteilchenmodells, d. h. eines einzelnen Protons in einem geschwindigkeitsunabhängigen kugelsymmetrischen Potential eingesetzt<sup>18)</sup>).

Man definiert für den Einquantenzerfall eine reduzierte Übergangswahrscheinlichkeit  $B(\lambda)$

$$B(\lambda) = \sum_{\mu, M_f} | \langle I_f M_f | \mathfrak{M}(\lambda) | I_i M_i \rangle |^2 \quad (2.13)$$

und schreibt damit also für die totale Übergangswahrscheinlichkeit (siehe 2.6)

$$T^{(1)} = \frac{8\pi(\lambda+1)}{\lambda[(2\lambda+1)!!]^2} \cdot \frac{1}{\hbar} k^2 \lambda^{+1} B(\lambda) \quad (2.14)$$

Für das Einteilchenmodell findet MOSKOWSKI<sup>18)</sup>

$$B(E\lambda) = \frac{1}{4\pi} e^2 \left[ \frac{3}{3+\lambda} R_0^2 \right]^2 \cdot S(I_i, \lambda, I_f) \quad (2.15)$$

im Fall eines elektrischen Übergangs und

$$B(M\lambda) = \frac{\lambda^2}{4\pi} \left( \frac{e\hbar}{2Mc} \right)^2 \left( g_S - \frac{2}{\lambda+1} g_\lambda \right)^2 S(I_i, \lambda, I_f) \quad (2.16)$$

für einen magnetischen Übergang. Der statistische Faktor  $S(I_i, \lambda, I_f)$  ist von der Grössenordnung eins und wird deshalb für diese Abschätzung vernachlässigt; ebenso das gyromagnetische Verhältnis des Bahndrehimpulses  $g_\lambda$  gegenüber dem des Protons  $g_S$ .

Bei der Zweiquantenemission ist in

$$| \langle i | \mathfrak{M}(1) | z \rangle \langle z | \mathfrak{M}(2) | f \rangle |^2$$

die Winkelverteilung implizite enthalten. EICHLER und JACOB<sup>11)</sup> haben diese berechnet. Für unsere Abschätzung wird eine isotrope Winkelverteilung angenommen; statistische Faktoren werden wieder gleich eins gesetzt. Es ergibt sich aus (2.15) und (2.16)

$$\frac{| \langle i | \mathfrak{M}(1) | z \rangle \langle z | \mathfrak{M}(2) | f \rangle |^2}{| \langle i | \mathfrak{M}(M\lambda) | f \rangle |^2} = \frac{e^2}{4\pi} \cdot \frac{\left( \frac{3}{3+\lambda_1} \right)^2 \left( \frac{3}{3+\lambda_2} \right)^2 \lambda^2(M)}{\lambda^2 \left( \frac{3}{3+\lambda} \right)^2} \frac{K(1) \cdot K(2)}{K(M\lambda)}$$

$\lambda(M)$  ist die Multipolordnung des magnetischen unter den beiden Übergängen. Die  $K$  sind empirische Korrekturfaktoren, sie sollen berücksichtigen, wie stark das Einteilchenmodell von der Erfahrung abweicht. Wenn für die Energie des Zwischenzustands wieder  $\omega_z - \omega_f = 3(\omega_i - \omega_f)$  eingesetzt wird, so folgen die numerischen Verhältnisse der Tabelle 2.

\*) Ba<sup>137</sup> hat 81 Neutronen, also magische Zahl minus 1. In der Systematik der Gamma-Zerfälle ist aber kein Unterschied zwischen Neutron oder Proton als «Leuchtnukleon» zu finden.

Tabelle 2

Art des Übergangs	$T^{(1)} : T^{(2)}$	$\frac{K(1) \cdot K(2)}{K(M4)}$
$E2 + M2$	$3,6 \cdot 10^{-5}$	$\frac{K(E2) \cdot K(M2)}{K(M4)}$
$M2 + E2$	$8,1 \cdot 10^{-5}$	
$E1 + M3$	$4,6 \cdot 10^{-3}$	$\frac{K(E1) \cdot K(M3)}{K(M4)}$
$M3 + E1$	$1,1 \cdot 10^{-2}$	
$E3 + M1$	$5,3 \cdot 10^{-5}$	$\frac{K(E3) \cdot K(M1)}{K(M4)}$
$M1 + E3$	$1,1 \cdot 10^{-4}$	

Es zeigt sich, dass auf die numerische Berechnung des Integrals in Gleichung (2.10) nicht verzichtet werden durfte, unterscheiden sich doch die Zahlenfaktoren des Verhältnisses  $T^{(2)} : T^{(1)}$  ganz erheblich.

### 3. Das Experiment

a) *Prinzip.* Die Unterscheidung der aus der Zweiquantenemission folgenden Photonen von allen anderen ist durch zwei Merkmale möglich: Gleichzeitigkeit und Energieverteilung. Beide Kriterien wurden bei der vorliegenden Messung verwendet. Wegen des Untergrundes von kosmischer Strahlung und zufälligen Koinzidenzen musste die Messung der Zweiquantenemission mit einer Kontrollmessung verglichen werden. Für diese wurde je ein  $\gamma$ -Spektrum von gleicher Intensität und aus gleichartigen Quellen auf jeden Detektor gegeben, so dass die gleiche Anzahl und die gleiche Energieverteilung von Untergrund-Koinzidenzen wie im Fall der eigentlichen Messung zu erwarten war.

b) *Quellen und geometrische Anordnung.* Das Cs<sup>137</sup> für die drei Quellen konnte vom A. E. R. F., Harwell bezogen werden. Nach der Art der Herstellung\*) sollte die darin enthaltene Aktivität von Cs<sup>134</sup> nicht mehr als  $1/50\,000$  der Cs<sup>137</sup>-Aktivität betragen, was sich im Verlauf der Messung auch bewahrheitete.

Die geometrische Anordnung von Quellen und Detektoren ist aus der Figur 2 ersichtlich. Die beiden NaJ-Kristalle von  $1\frac{3}{4}$ " Durchmesser und  $1\frac{1}{2}$ " Länge waren in vertikaler Richtung durch 10 cm, in horizontaler Richtung 5 cm Blei abgeschirmt. Ein automatischer Präparatwechsler sorgte dafür, dass sich «Messung» und «Kontrollmessung» abwechselungsweise folgten. Er plazierte die Quellen mit grosser Genauigkeit abwechselungsweise an die in Figur 2 dargestellten Stellen. Während eines Wechsels wurden die Zähler umgeschaltet und die Kamera transportierte ein Bild weiter.

\*) Cs<sup>137</sup> und Cs<sup>133</sup> entstehen aus Zerfallsprodukten bei Bestrahlung von Uran mit Neutronen, Cs<sup>134</sup> durch  $n$ -Einfang aus Cs<sup>133</sup>. Der Gehalt an Cs<sup>134</sup> steigt demnach quadratisch mit der Bestrahlungsdauer.



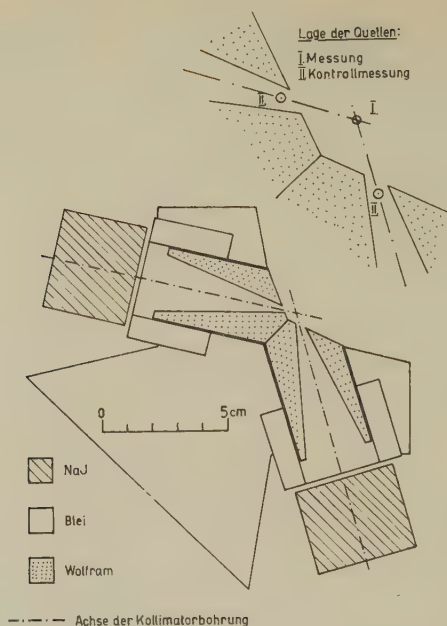


Fig. 2

Anordnung der Quellen und Detektoren

c) *Elektronische Apparaturen.* Die Auswahl der koinzidenten Ereignisse und die gleichzeitige Aufzeichnung der Impulsamplitude aus beiden Detektoren erfolgte entsprechend dem Funktionsschema Figur 3. Es handelt sich dabei um die übliche «fast-slow»-Koinzidenztechnik. Die beiden Impulshöhen wurden photographisch registriert<sup>19)</sup>. Die Auslenkung des Leuchtflecks auf einer Kathodenstrahlröhre in zwei Dimensionen ist jeweils den beiden Impulsamplituden proportional. Bei Umschaltung auf die in Figur 3 gestrichelt eingezeichneten Verbindungen arbeitet die Anlage als Graukeil-Spektrograph.

Weil bei diesem Experiment die erwartungsgemäss seltenen Ereignisse der Zweiquantenemission aus sehr vielen anderen herausgesucht werden mussten, sollte die Messapparatur etwas höheren Anforderungen genügen, als sonst vielleicht üblich. Diese Anforderungen sind:

Hohe Koinzidenzauflösung ohne Verluste.

Sichere Diskriminierung der Störimpulse (thermische Elektronenemission an der Photokathode und elektrische Störungen).

Keine Beeinflussung der Energiemessung durch vorausgegangene Detektorimpulse.

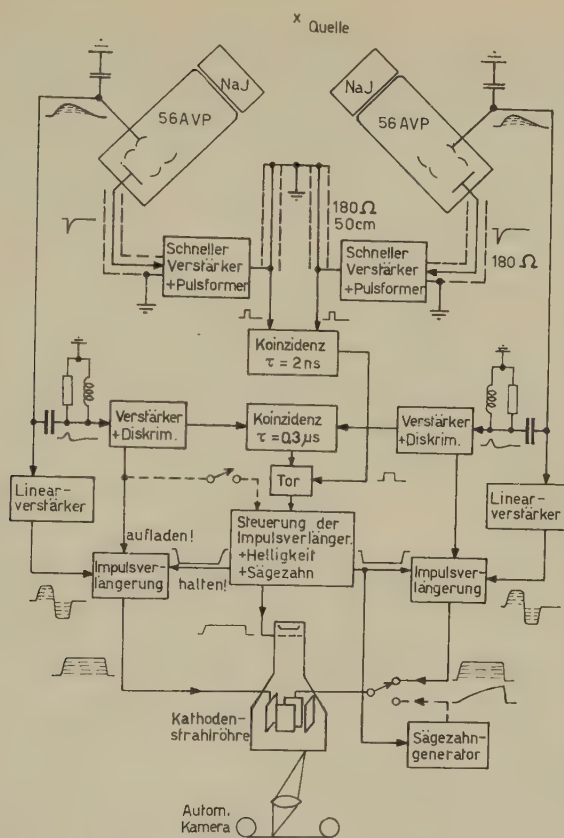


Fig. 3

Blockschema zur Messanordnung

Grosse Stabilität und Betriebssicherheit wegen der langen Dauer der Messung.

1. *Koinzidenzmessung.* Der verwendete NaJ-Szintillator gibt eine relativ gute Energieauflösung, andererseits erschwert er aber wegen seiner langen Leuchtdauer eine Koinzidenzmessung mit hoher Zeitauflösung. Man kann erwarten, dass ein Lichtimpuls, der durch 100 keV Elektronenenergie im Szintillator erzeugt wird, an der Photokathode ca. 100 Elektronen auslöst. Das ergibt bei einer Abklingdauer des Szintillators von  $\tau = 0,25 \mu\text{sec}$  im Mittel 0,8 Elektronen während der ersten 2 nsec, in denen das Signal für die Koinzidenz erzeugt werden sollte. Man könnte innerhalb dieser Zeit ein solches Ereignis also nicht von einem thermisch erzeugten Elektron unterscheiden. Für eine solche Unterscheidung muss

man also etwas länger warten, nämlich solange, bis ein gewisser Schwellenwert überschritten ist, der mehr als einem Elektron entspricht. Damit nimmt man aber eine Verzögerung der kleinen Detektorimpulse gegenüber den grossen in Kauf. Die Impulse von der Anode des Photo-Elektronenvervielfachers wurden deshalb zunächst auf einen «schnellen» Verstärker (siehe Fig. 3) gegeben, der mit einer gewissen Impulsumformung dafür sorgt, dass diese Verzögerungen nicht allzu gross werden.

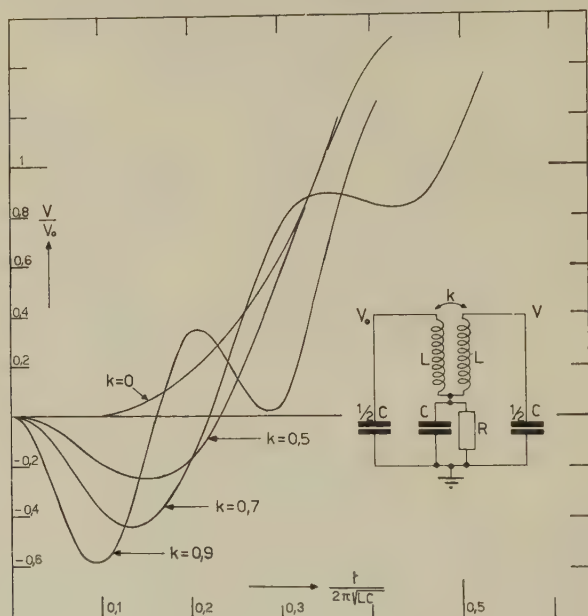
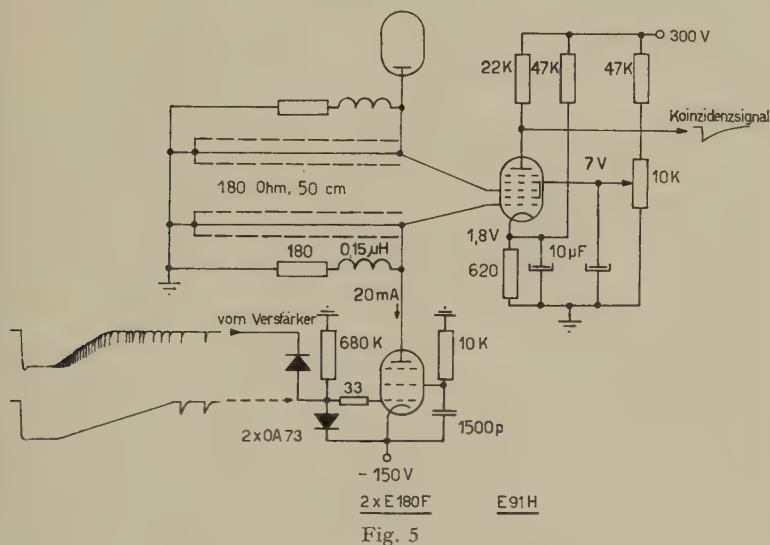


Fig. 4

Berechnete Übertragungseigenschaften des Kopplungsnetzwerks  
(Dämpfung vernachlässigt)

Dieser Verstärker ist eine leichte Modifikation einer schon beschriebenen Schaltung<sup>20)</sup>. Er verstärkt mit 4 Röhren 30fach, die Arbeitswiderstände im Kopplungsglied (siehe Fig. 4) haben 220 Ohm, die Selbstinduktionen  $0,07 \mu\text{Hy}$ . Die in Figur 4 dargestellte berechnete Übertragungsfunktion dieses Kopplungsgliedes, das sich zwischen einer Anode und dem Gitter der nachfolgenden Röhre befindet, konnte an einem Modell mit grösseren Werten für  $L$  und  $C$  verifiziert werden. Im praktisch verwendeten Fall ist die Einheit des Zeitmaßstabes  $2\pi\sqrt{L \cdot C} = 4,5 \cdot 10^{-9} \text{ sec}$ , und  $k=0,7$ , der Nulldurchgang der Funktion ist dann bei  $t = 10^{-9} \text{ sec}$ . Die beschriebenen Übertragungseigenschaften ergeben eine impulshöhenunabhängige Verzögerung und einen steileren Anstieg der Signalfanke als von einem

rein Ohmschen Verstärker zu erwarten wäre, wodurch die Zeitverzögerung der kleinen Impulse etwas herabgesetzt wird. Der Verstärker wird in praktisch jedem Fall übersteuert, so dass an seinem Ausgang ein normalisierter negativer Impuls resultiert; die Übersteuerung hinterlässt keine merklichen Nachwirkungen.



Schema der Endstufen und Koinzidenzschaltung

Die Schaltung der Endstufen und der Koinzidenzmischung ist in Figur 5 dargestellt. Das Netzwerk mit den Dioden in der Gitterleitung der Endstufen trägt weitgehend der zweiten, oben aufgestellten Forderung Rechnung. Der Stromimpuls an der Anode des Photo-Elektronenvervielfachers besteht eigentlich aus einzelnen Stößen, die je von einem an der Kathode ausgelösten Elektron erzeugt werden. Diese haben einen zeitlichen Verlauf in Form einer Gaußschen Glockenkurve, die durch die Eigenschaften des Elektronenvervielfacher-Systems gegeben ist\*). Die Häufigkeit dieser Stöße folgt einem Exponentialgesetz (Abklingen des Szintillatorleuchtens). Es könnte nun der Fall eintreten, dass zwei zeitlich nahe zusammenfallende Detektorimpulse zwar zunächst keine «schnelle» Koinzidenz, sondern nur eine «langsame» auslösen. Unter den während des Abklingens des Szintillatorleuchtens häufigen Ein-Elektronenstößen kann aber mit relativ grosser Wahrscheinlichkeit eine zufällige «schnelle» Koinzidenz auftreten, so dass dieses Ereignis schliesslich

\*) Die GAUSS-Verteilung hat eine Halbwertsbreite von 2 nsec für die 56AVP. Die ursprünglich verwendeten RCA 6810 konnten nicht befriedigen.

registriert würde. Daraus könnte eine höhere effektive Frequenz der zufälligen Koinzidenzen resultieren, als der hohen Koinzidenzauflösung entspricht. Die Impulsverlängerung durch das genannte Netzwerk schneidet nun diese Ein-Elektronenstöße weitgehend ab, zudem ist die Verstärkung so eingestellt, dass auch deren Amplitude zum Auslösen des Koinzidenzsignals nicht ganz ausreicht.

Die Koinzidenzmischung besorgt eine konventionelle Mehrgitterröhre (E91H), deren Schirmgitterspannung aber so tief eingestellt ist (+ 5 V) dass sie mit  $-1,8$  V auf nur einem Steuergitter praktisch gesperrt ist. Es fließt ca. 1 mA Anodenstrom während der Zeit, in der beide Steuergitter geöffnet sind. Dadurch wird das Signal an der Anodenkapazität der Mischröhre genau dieser Zeit proportional. Es wird noch 300fach verstärkt und zur Diskriminierung auf eine SCHMITT-Triggerstufe gegeben.

Diese für das vorliegende Experiment entwickelte Koinzidenzschaltung ist schon früher in einem anderen Zusammenhang beschrieben worden<sup>21)</sup>.

Das Ergebnis des Experiments hängt ganz wesentlich von den Eigenschaften der Koinzidenzapparatur ab; diese ist deshalb zu Beginn der Messungen eingehend geprüft worden, sie wurde auch während der Dauer der Messung periodisch kontrolliert. Ein bequemes Mittel dazu ist die Untersuchung des verstärkten Signals von der Anode der Mischröhre. Die direkte Messung der Anstiegszeit des «schnellen» Verstärkers wäre mit erheblichen Schwierigkeiten verbunden, mit Hilfe des genannten Signals kann aber leicht verifiziert werden, dass sie kleiner als 1 nsec ist: die Anstiegszeit der durch kurzgeschlossene Kabel erzeugten Rechteckimpulse muss kleiner sein als die Dauer der Rechtecke, solange das Koinzidenzsignal dieser Dauer proportional ist. Eine angenäherte Proportionalität konnte, bei optimaler Einstellung der Kapazitäten  $C$  in den Kopplungsgliedern (siehe Fig. 4), bis auf 2 nsec herunter nachgewiesen werden. Wurden dagegen die Impulse am Eingang der beiden «schnellen» Verstärker um eine bekannte Zeit  $\Delta t$  gegeneinander verschoben, so konnte die Kurve  $A$  der Figur 6 gemessen werden. Durch Einstellen der Diskriminatorschwelle auf einer bestimmten Höhe dieser dreiecksähnlichen Kurve kann die Koinzidenzbreite festgesetzt werden. Es zeigte sich, dass diese Schaltung ohne weiteres eine Koinzidenzauflösung von  $< 1$  nsec gestattet.

Die von 2 koinzidenten  $\gamma$ -Quanten ausgelösten Detektorimpulse haben entsprechend ihrer Grösse und den Eigenschaften des Elektronenvervielfacher-Systems eine gewisse zeitliche Streuung. Diese kann wieder untersucht werden, indem man die einen Detektorimpulse gegenüber den andern um eine Zeit  $\Delta t$  verzögert und die Koinzidenzrate misst. Figur 6B zeigt das Resultat für das integrale Spektrum von  $\text{Co}^{60}$ -Koinzidenzen,



Figur 6C die gleiche Grösse nur für die in die Photospitzen fallenden Impulse. Aus Figur 6C ist ersichtlich, dass für solche Detektorimpulse, die in einen schmalen Amplitudenbereich fallen, eine effektive Koinzidenzauflösung von 2 nsec ohne wesentliche Verluste erzielt werden kann. Bei Zulassung von Impulsen stark variabler Grösse muss diese Zeit allerdings auf den Wert von ca. 5 nsec (siehe Fig. 6B) vergrössert werden.

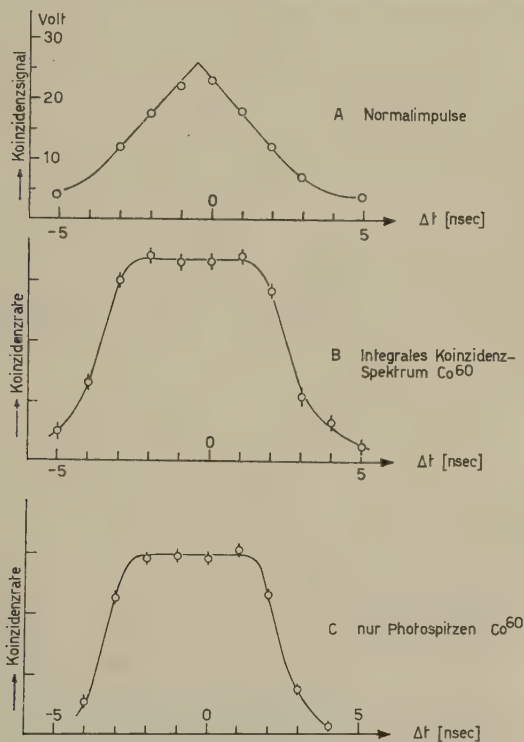


Fig. 6

Verhalten der Koinzidenzanlage bei zeitlicher Verschiebung der Detektorimpulse bzw. Normalimpulse

2. *Energiemessung.* Es wird die simultane Aufzeichnung der in beiden Detektoren gemessenen  $\gamma$ -Energie benötigt, aber nur dann, wenn die beiden  $\gamma$ -Quanten in Koinzidenz sind. Die Feststellung der Koinzidenz beansprucht eine gewisse Zeit. Deshalb passieren zunächst *alle* Impulse den Linearverstärker und lösen von einem gewissen Schwellenwert an die Aufladung der Impulsverlängerungsstufe (siehe Fig. 3) aus. Damit unter allen Umständen die Energie richtig gemessen wird, müssen deshalb sowohl der Linearverstärker als auch die Impulsverlängerungs-Stufe gegenüber Überlagerungen gesichert sein.

Der Linearverstärker ergibt ausser der notwendigen Verstärkung eine Umformung und Begrenzung, welche Überlagerungen weitgehend ausschliessen. Die Impulse aus dem Detektor haben je einen exponentiellen Anstieg und Abfall mit Zeitkonstanten von 0,25 bzw.  $10 \mu\text{sec}$ . Am Ausgang des Linearverstärkers sind sie auf ein positives, gefolgt von einem negativen Rechteck umgeformt und erreichen nach  $2,6 \mu\text{sec}$  wieder exakt die Nullage. Die Vorteile dieser Impulsform sind schon öfters beschrieben worden<sup>22)</sup>, sie bestehen hauptsächlich darin, dass der Messimpuls während einer kurzen Zeit annähernd konstant bleibt und keine niederfrequente Komponente enthält. Im hier verwendeten Verstärker sorgt eine spezielle Kompensationsschaltung dafür, dass die Impulse ein ebenes Dach besitzen (Korrektur des  $10 \mu\text{sec}$ -Abfalls am Eingang). Ausserdem wird im Falle einer Übersteuerung die Ausgangsamplitude scharf auf ca. 100 V begrenzt; merkliche Nachwirkungen bleiben auch dann keine zurück. Die Abweichungen von der integralen Linearität sind für Ausgangsimpulse zwischen 0 und 95% der maximalen Amplitude stets kleiner als 0,25%. Auch bei höchsten Stosszahlen (bis  $2 \cdot 10^5 \text{ sec}^{-1}$ ) treten keine anderen unerwünschten Effekte als die statistisch zu erwartenden Überlagerungen auf. \*)

3. *Impulsverlängerung.* Schaltungen zur Verlängerung von Messimpulsen treten in irgend einer Form in jedem Impulsspektrometer auf. MAEDER<sup>19)</sup> hat die an einen solchen Apparat gestellten Anforderungen ausführlich untersucht und eine Schaltung für eine Ladestufe mit Kathodenfolger vorgeschlagen. Dieses Prinzip wurde hier verwendet. Die Schaltung konnte noch wesentlich vereinfacht und für kürzere Auf- und Entladungszeiten ausgelegt werden (Fig. 7).

Dank der symmetrischen Impulsform am Eingang ist keine Aufladung des Kondensators  $C_1$  zu befürchten, solange die linke Hälfte der Röhre  $T_1$  keinen Gitterstrom zieht. Um dies zu verhüten, wird im Falle des Speicherns durch einen Impuls am linken Gitter von  $T_2$  der Ruhestrom von  $T_1$  abgestellt. Die nachfolgende Schaltung ist durchgehend gleichstromgekoppelt.

Die Speicherkapazität  $C_2$  kann nur aufgeladen werden, wenn der Steuerimpuls ① die Kathode der rechten Hälfte von  $T_1$  freigibt. Dieser Steuerimpuls der Dauer  $\tau_1$  steht zum Messimpuls in festem zeitlichem Verhältnis. Während  $\tau_1$  entscheiden die beiden Koinzidenzmischungen über die Verwertung des Impulses, ist der Entscheid positiv, so löst die Rückflanke von ① den Steuerimpuls ② aus, und die an  $C_2$  liegende Meßspannung wird bis zum Ende von  $\tau_2$  gespeichert. Während  $\tau_2$  sind all-

\*) Siehe auch: W. BEUSCH und R. MÜLLER, «Ein überlastbarer Verstärker für hohe Impulsfrequenzen». Erscheint in Helv. Phys. Acta (Frühjahrstagung 1960 der SPG).

fällige Aufladebefehle **①** unterdrückt. Das Netzwerk mit der Diode am linken Gitter von  $T_3$  bewirkt ein rascheres Entladen von  $C_2$  beim Ausbleiben des Haltebefehls **②**. Der Ausgang geht direkt auf die eine Ablenkplatte der Kathodenstrahlröhre und über eine Umkehrstufe sym-

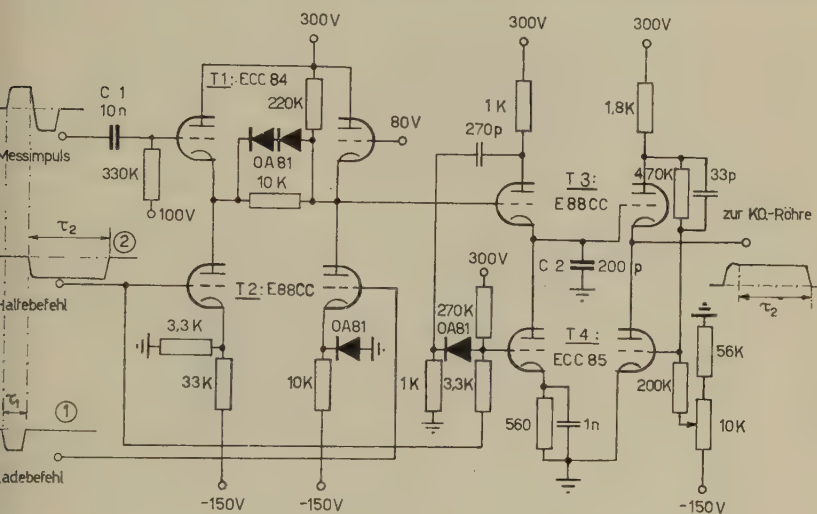


Fig. 7

Schema zur Impulsverlängerungsschaltung

metrisch auf die andere Ablenkplatte. Es ist keine wesentliche Entladung von  $C_2$  während 100  $\mu\text{sec}$  festzustellen. Anfänglich bereitete allerdings der Gitterstrom (bei negativer Gittervorspannung) in der rechten Hälfte von  $T_3$  gewisse Schwierigkeiten, handelt es sich doch um Ströme von der Größenordnung 0,1  $\mu\text{A}$ .

4. *Speicherung der Information.* Synchron mit dem Haltesignal **②** wird die Kathodenstrahlröhre (5 ABP 1) hellgesteuert. Der Leuchtfleck wird durch die verlängerten Messimpulse in horizontaler und vertikaler Richtung angesteuert und festgehalten. Der Verschluss einer automatischen Kamera ist während der Dauer einer Messung ständig offen, so dass der Film jede Koinzidenz dauerhaft festhält. Es geht keinerlei Information über Koinzidenzen verloren. Sollten durch irgendwelche Störungen unerwünschte Nebeneffekte auftreten, so werden auch diese registriert und können so untersucht und beseitigt werden. Trotz zahlreicher Störquellen im Phys. Institut der ETH konnten nie irgendwelche «falschen» Signale festgestellt werden.

Eine einzelne Aufnahme dauerte jeweils 3 Stunden. Die Kamera wurde von der weiter oben beschriebenen Automatik gesteuert. Nach 24 Stunden Dauerbetrieb wurden jeweils zur Kontrolle des Energiemaßstabes die

von den beiden Detektoren gelieferten Einzelspektren aufgenommen. Dazu wurde der Koinzidenzspektrograph durch einfache Umschaltungen (siehe Fig. 3) als Graukeilspektrograph verwendet. Figur 8 zeigt ein Beispiel der so erhaltenen Bilder.

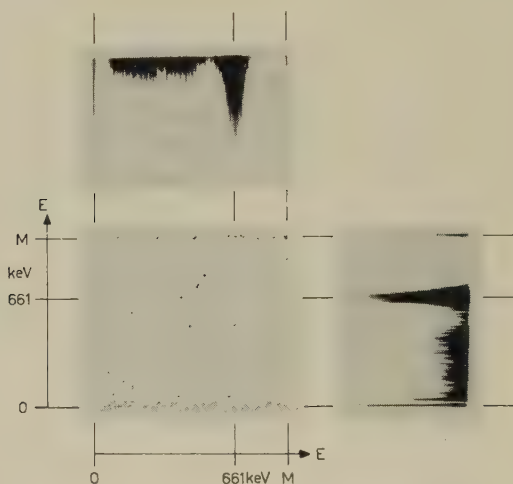


Fig. 8

#### Koinzidenzspektrum und Energieeichung

Dauer der Koinzidenzmessung 3 Stunden, Belichtungsdauer für einen Punkt 0,1 msec. Bei den Koinzidenzen auf den Geraden *M* ist der Verstärker übersteuert. Die Einzelspektren sind mit der gleichen Belichtungsdauer pro Ablenkung aufgenommen; sie enthalten nur 5000 Impulse.

#### 4. Auswertung und Korrekturen

a) *Auswertemethode.* Die Auswertung der ca. 1000 Aufnahmen von der Art der Figur 8 musste visuell vorgenommen werden. Dazu wurden die Filmnegative auf eine Mattscheibe projiziert. Die von je einer Koinzidenz erzeugten Punkte wurden nach ihrer Lage im Koordinatensystem in horizontaler und vertikaler Richtung in 8 Kanäle aufgeteilt, die einem Energieintervall von 90 bzw. 180 keV entsprachen. Die Grenzen dieser Kanäle wurden derart zwischen die auftretenden  $\gamma$ -Linien angelegt, dass zwischen den zufälligen Koinzidenzen aus dem  $\text{Cs}^{137}$ -Einquantenzerfall und den wahren Koinzidenzen aus eventuell in der Quelle vorhandenem  $\text{Cs}^{134}$  möglichst gut unterschieden werden konnte (siehe Fig. 13). Das Raster wurde jeweils nach den Photospitzen in den beiden Einzelspektren angepasst. Da sich auf dem Film «Messung» und «Kontrollmessung» abwechselungsweise folgten, sollten sich apparative Schwankungen im Mittel herausheben.

Die Resultate dieser Auswertung wurden nach folgenden Gesichtspunkten analysiert:

Statistik der Schwankungen zur Kontrolle der Apparatur.

Zahl und Verteilung der zufälligen Koinzidenzen zur experimentellen Bestimmung der effektiven Koinzidenzauflösung.

Differenz zwischen «Messung» und «Kontrollmessung» zur Bestimmung der Korrekturen (Cs<sup>134</sup>-Koinzidenzen und eventuell andere).

Für die Auszählung der für die Zweiquantenemission in Frage kommenden Ereignisse, die ja die Energiebeziehung (2.7), d. h.

$$E_{\gamma 1} + E_{\gamma 2} = E_{\gamma} = 661 \text{ keV} \quad (4.1)$$

erfüllen, wurde das Raster von Figur 9 verwendet, da in der groben Einteilung der Fig. 13 die relativ gute Energieauflösung der Apparatur verloren gegangen wäre.

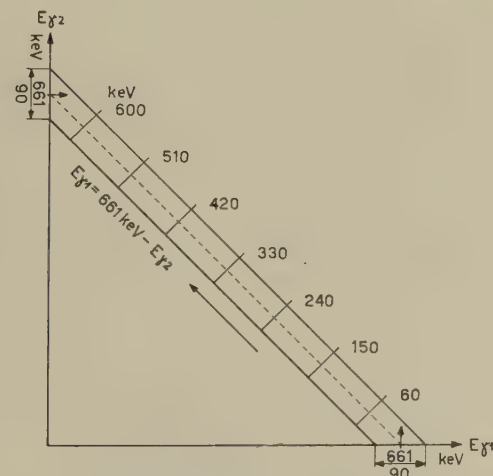


Fig. 9

Raster zur Auszählung der Zweiquanten-Koinzidenzen

b) *Zufällige Koinzidenzen.* Die Verteilung der zufälligen Koinzidenzen wurde anhand der mit einem 64-Kanal-Impulsanalysator gemessenen Spektren aus den beiden Detektoren berechnet. Für die experimentelle Bestimmung wurde der Nulleffekt der Koinzidenzen während 276 Stunden gemessen und die Differenz zwischen «Kontrollmessung» und Nulleffekt gebildet. Die so erhaltene experimentelle Verteilung stimmte mit der berechneten innerhalb des statistischen Fehlers überein, wenn für die Frequenz der zufälligen Koinzidenzen

$$n_{zuf.} = 140/100 \text{ h}$$



eingesetzt wird. Mit diesem Wert, und mit Hilfe der in den beiden Detektoren gezählten Impulsfrequenzen von  $n_1 = 264 \text{ sec}^{-1}$  und  $n_2 = 250 \text{ sec}^{-1}$  berechnet sich die effektive Koinzidenzdauer  $2\tau$ :

$$2\tau = \frac{n_{\text{zuf.}}}{n_1 \cdot n_2} = 5,5 \cdot 10^{-9} \text{ sec} \quad (4.2)$$

Die Übereinstimmung des hier berechneten Wertes von  $2\tau$  mit dem aus Fig. 6B abzulesenden gibt Gewähr für ein richtiges Funktionieren der Koinzidenzmessung. Die Anzahl der zufälligen Koinzidenzen muss für die Korrektur der Zweiquanten-Messwerte nicht herangezogen werden, da sie ja durch die Differenzbildung mit der «Kontrollmessung» herausfällt.

c) *Koinzidenzen aus Verunreinigungen der Quelle.* Als hauptsächliche Verunreinigung der Quelle ist eine Beimischung von  $\text{Cs}^{134}$  zu erwarten. Dieses hätte dann bei der Herstellung der Quelle in grösserer Menge entstehen können, wenn das bestrahlte natürliche Uran eine relativ kleine Menge von  $\text{Cs}^{133}$  enthalten hätte.

Zur Bestimmung der  $\text{Cs}^{134}$ -Aktivität wurden die Koinzidenzen gesucht, die einer 797–605-keV-Kaskade zugeschrieben werden können. Von allen  $\gamma$ -Quanten, die von  $\text{Cs}^{134}$  emittiert werden, gehören ca. 90% dieser Kaskade an. Die Trennung dieser Koinzidenzen von den zufälligen und den durch Zweiquantenemission erzeugten ist glücklicherweise deshalb möglich, weil eine grössere Energie dabei beteiligt ist. Ihre Verteilung wurde aus den gemessenen Einzelspektren berechnet. Sie ist in Figur 10 dargestellt, desgleichen in Klammern die experimentell bestimmte Verteilung.

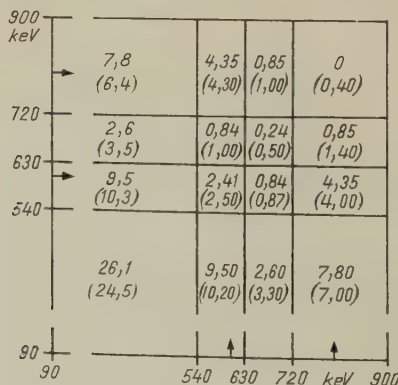


Fig. 10

Koinzidenzspektrum des  $\text{Cs}^{134}$

Die eingetragenen Zahlen sind die berechneten prozentualen Anteile pro Feld. Die eingeklammerten Zahlen sind experimentelle Werte. Die Pfeile geben die Lage der beiden intensivsten Gamma-Linien

Weil dabei aber nicht genau die gleiche geometrische Anordnung erreicht werden konnte, werden die berechneten Werte als zuverlässiger angesehen.

Die Differenz zwischen «Messung» und «Kontrollmessung» in geeigneten Gebieten der zweidimensionalen Verteilung kann nun mit den Werten der Figur 10 verglichen werden. Der statistische Fehler dieser Differenzen ist ziemlich gross (siehe Fig. 13). Ein gewogener Mittelwert gibt für die totale Zahl der Cs<sup>134</sup>-Koinzidenzen

$$n_{134} = (50 \pm 20)/100 h \quad (4.3)$$

Aus dieser Zahl und der Verteilung der Koinzidenzen berechnet man für ein Feld von  $90 \times 90$  keV in der Umgebung der Geraden (4.1), auf der die Koinzidenzen aus einem Zweiquantenzerfall liegen, im Mittel eine Anzahl

$$n_{134}^{\square} = (0,52 \pm 0,205)/100 h \quad (4.4)$$

d) *Abschätzung der Bremsstrahlungseffekte.* Bei den ersten Versuchen befand sich die Quelle in einem 0,7 mm starken Glasröhrchen. Dabei konnte in einem Gebiet  $E\gamma_1 + E\gamma_2 < 100$  keV ein deutlicher Effekt festgestellt werden, der nur durch eine zweimalige Emission von Bremsquanten durch ein  $\beta$ -Teilchen aus der Quelle erklärt werden konnte. Bei der später verwendeten dünneren Quelle (ca. 0,5 mm CsCl auf 0,05 mm Ni-Folie) verminderte sich dieser Effekt erwartungsgemäss. Es zeigte sich immerhin die Notwendigkeit, die Häufigkeit solcher Prozesse abzuschätzen.

Es sei  $\Phi(\gamma, \varepsilon)d\gamma$  der Wirkungsquerschnitt für den Prozess, dass ein Elektron der Energie  $\varepsilon$  ein Quant im Energiebereich  $\gamma \dots \gamma + d\gamma$  emittiert. Die Wahrscheinlichkeit dafür, dass ein Elektron der Anfangsenergie  $\varepsilon_0$  längs seines Weges ein Photon im gleichen Energiebereich aussendet, ist dann

$$dW(\gamma, \varepsilon_0) = d\gamma N_0 \int_0^{\varepsilon(\varepsilon=\gamma)} \Phi(\gamma, \varepsilon) dx = d\gamma N_0 \int_{\varepsilon_0}^{\varepsilon} \Phi(\gamma, \varepsilon) \frac{dx}{d\varepsilon} \cdot d\varepsilon \quad (4.5)$$

worin  $N_0$  die Anzahl Atome/cm<sup>3</sup> und  $dx/d\varepsilon$  der reziproke spezifische Energieverlust sind. Für die Emission von zwei Photonen muss entsprechend der Figur 11 zweimal integriert werden.

$$d^2W(\gamma_1 \gamma_2 \varepsilon_0) = d\gamma_1 d\gamma_2 N_0^2 \int_{\varepsilon_0 - \gamma_1}^{\gamma_2} \left( \frac{dx}{d\varepsilon} \Phi(\gamma_1, \varepsilon + \gamma_1) \int_{\varepsilon}^{\varepsilon + \gamma_2} \frac{dx}{d\varepsilon'} \Phi(\gamma_2, \varepsilon') d\varepsilon' \right) d\varepsilon \quad (4.6).$$

Die Lösung dieser mehrfachen Integrale mit numerischen Methoden wäre sehr umständlich. Es wurden deshalb die Grössen  $\Phi(\gamma, \varepsilon)^{(23)}$  und  $dx/d\varepsilon^{(24)}$  durch einfache analytische Funktionen approximiert:

$$\left. \begin{aligned} \Phi(\gamma, \varepsilon) &= \bar{\Phi} \cdot \left( \frac{1}{\gamma} - \frac{1}{\varepsilon} \right) \\ \frac{dx}{d\varepsilon} &= 0,22 \frac{g}{cm \cdot mc^2} \end{aligned} \right\} (4.7)$$

darin bedeuten

$$\bar{\Phi} = 21 \frac{Z r_0^2}{137}$$

wenn  $\gamma$  und  $\varepsilon$  in  $mc^2$  gemessen sind und  $r_0$  der klassische Elektronenradius ist.

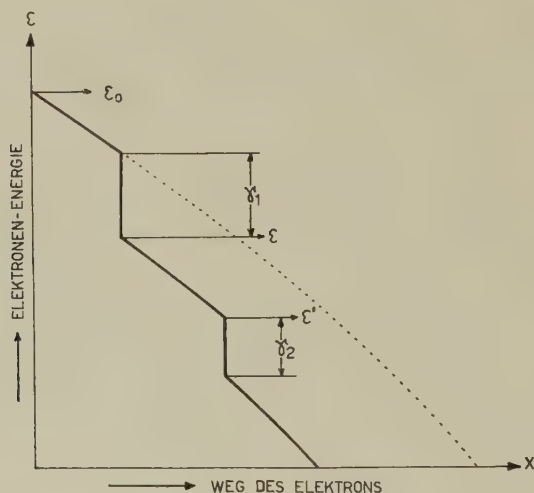


Fig. 11

*Zur Berechnung der Bremsstrahlungseffekte*

Wenn (4.7) in (4.6) eingesetzt wird, so tritt bei der zweiten Integration ein Term der Form

$$\int \frac{\ln x}{x+a} dx = D_2 \quad D_2: \text{Dilogarithmus}$$

der nicht in geschlossener Form berechnet werden kann. Für  $\varepsilon \geq \gamma_2$  gilt die Näherung

$$\frac{\varepsilon - \gamma_2}{\gamma_2} - \ln \varepsilon \simeq \frac{\varepsilon - \gamma_2}{\gamma_2} \left( 1 - \frac{\gamma_2}{\varepsilon} \right)$$

mit der das doppelte Integral dann schliesslich ausgerechnet werden kann. Diese Näherungen können unter gewissen Umständen einen merklichen Fehler einführen, die Abschätzung liefert aber in jedem Fall einen zu grossen Wert.

Das Integral (4.6) ergibt ausgerechnet

$$d^2W(\gamma_1 \gamma_2 \varepsilon_0) = d\gamma_1 d\gamma_2 N_0^2 \bar{\Phi}^2 \left( \frac{dx}{d\varepsilon} \right)^2 \frac{(\gamma_1 + \gamma_2)^2}{\gamma_1 \gamma_2} \left[ \frac{1}{2} \frac{\varepsilon_0^2}{(\gamma_1 + \gamma_2)^2} - 2 \frac{\varepsilon_0}{\gamma_1 + \gamma_2} + \frac{3}{2} + \ln \frac{\varepsilon_0}{\gamma_1 + \gamma_2} \right] = d\gamma_1 d\gamma_2 N_0^2 \bar{\Phi}^2 \left( \frac{dx}{d\varepsilon} \right)^2 \frac{(\gamma_1 + \gamma_2)^2}{\gamma_1 \gamma_2} \cdot F \left( \frac{\varepsilon_0}{\gamma_1 + \gamma_2} \right) \quad (4.8)$$

Weil sich die Integration über den ganzen Bereich von  $\varepsilon$  erstreckte, ist also für die Rechnung angenommen, dass das Elektron in der Quelle vollständig gebremst wird.

Vom grössten Interesse ist die Verteilung der zweifachen Bremsquanten in der Umgebung der Geraden (4.1). Man kann deshalb  $\gamma_1 + \gamma_2 = \gamma$  setzen und über  $\gamma_2$  integrieren.

$$dW(\gamma_1 \varepsilon_0) = d\gamma \cdot N_0^2 \bar{\Phi}^2 \left( \frac{dx}{d\varepsilon} \right)^2 F \left( \frac{\varepsilon_0}{\gamma} \right) \cdot \gamma \left[ \ln \frac{\gamma_1}{\gamma - \gamma_1} \right]_{\gamma_1=0}^{\gamma_1=\gamma}$$

Das Integral divergiert logarithmisch ( $\Phi(\gamma, \varepsilon_0)$  divergiert wie  $1/\gamma$ ). Weil die weichen Bremsquanten nicht interessieren, kann man die Grenzen, in Übereinstimmung mit der Auswertung (siehe Fig. 9) so festsetzen, dass Bremsquanten einer Energie  $\gamma_{1,2} < 60$  keV nicht berücksichtigt sind. Man erhält dann das in Figur 12 dargestellte Resultat. Der Parameter  $\gamma$

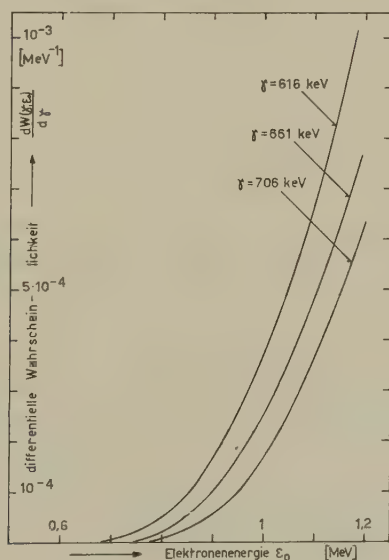


Fig. 12

Wahrscheinlichkeit für die Emission von 2 Bremsquanten

Ein Elektron, das anfänglich die Energie  $\varepsilon_0$  besitzt, soll längs seines Weges nacheinander zwei Quanten der Energie  $\gamma_1$  bzw.  $\gamma_2$  emittieren. Kurvenparameter ist die Summe  $\gamma = \gamma_1 + \gamma_2$ . Die Energie eines Bremsquants soll je grösser als 60 keV sein.

ist die Summe der Energien der beiden Bremsquanten; es wurden gerade die Grenzen und die Mittellinie des zur Auswertung verwendeten Streifens (Fig. 9) für  $\gamma$  eingesetzt.

Es kann nun über ein Gebiet  $G$  der Energieverteilung mit den Grenzen

$$60 \text{ keV} \leq \gamma_1 \leq \gamma - 60 \text{ keV}$$

$$661-45 \text{ keV} = \gamma = 661 + 45 \text{ keV}$$

numerisch integriert werden. Die so erhaltene Wahrscheinlichkeit pro Elektron der Energie  $\epsilon_0$  wird noch mit der relativen Häufigkeit der Energie  $\epsilon_0$  multipliziert, die durch das  $\beta$ -Spektrum ( $AI = 2$ , «yes»,  $T_0 = 1.18 \text{ MeV}$ ) gegeben ist. Eine weitere numerische Integration liefert schliesslich die Wahrscheinlichkeit dafür, dass ein Elektron aus dem genannten  $\beta$ -Zerfall zwei Bremsquanten emittiert, die in das für die Zweiquantenemission interessante Energiegebiet  $G$  fallen:

$$W(G) = 1,7 \times 10^{-6} \quad (4.9)$$

Nun zerfällt aber  $\text{Cs}^{137}$  nur zu ca.  $8^\circ$  direkt in den Grundzustand, was zu einem  $\beta$ -Spektrum mit einer Endpunktsenergie von  $1,18 \text{ MeV}$  Anlass gibt<sup>15, 25</sup>). Die Wahrscheinlichkeit, dass bei einem Zerfall von  $\text{Cs}^{137}$  zwei Bremsquanten auftreten, die nach ihrer Energie mit einem Zweiquanten-Zerfall verwechselt werden könnten, ist also kleiner als  $2 \times 10^{-7}$ , so dass diese Korrektur hier vernachlässigt werden kann. In einem anderen Fall, wo die  $\beta$ -Teilchen höhere und die  $\gamma$ -Quanten niedrigere Energie hätten, könnte dieser Effekt die Messung der Zweiquanten-Emission allerdings stören.

Weitere Koinzidenzen könnten vom Prozess der inneren Bremsstrahlung, gefolgt von einer gewöhnlichen Bremsquantenemission des austretenden Elektrons, erzeugt werden. Die Bremsquantenemission am  $\beta$ -zerfallenden Kern hat aber eine ähnliche Wahrscheinlichkeit und Energieverteilung wie die Bremsquantenemission längs des Weges des Elektrons<sup>26</sup>). Diese Korrektur fällt deshalb in die gleiche Grössenordnung wie die oben berechnete und wird ebenfalls vernachlässigt.

Die Konversionselektronen geben keinen Beitrag, ebenso die häufigeren  $\beta$ -Zerfälle mit einer maximalen Energie von  $520 \text{ keV}$ .

e) *Compton-Streuung*. Die Streuung eines  $\gamma$ -Quants durch Compton-Effekt von einem Szintillationskristall in den anderen könnte zu Koinzidenzen Anlass geben, die zudem noch die Energiebeziehung (4.1) erfüllen, also als Ereignisse der Zweiquanten-Emission gezählt würden. Die Form der Abschirmung und der Winkel zwischen den beiden Detektoren wurden deshalb so gewählt, dass der genannte Prozess mit Sicherheit ausgeschlossen ist. Es ist nämlich im ungünstigsten Fall die Trans-



missionswahrscheinlichkeit durch die Abschirmung für ein Compton-gestreutes Quant:

$$W = e^{-\mu L} = 10^{-17}$$

$$(L = 3 \text{ cm in Wolfram, } \mu_W(200 \text{ keV}) = 12 \text{ cm}^{-1})$$

Dieser Effekt erfordert also keine Korrektur.

f) *Beiträge einer Kaskade.* Wenn der metastabile Zustand des Ba<sup>137</sup> über eine Kaskade zerfallen könnte, so würden die beiden  $\gamma$ -Quanten natürlich auch die Energiebeziehung (4.1) erfüllen; sie wären aber monoenergetisch. Eine solche Kaskade wurde bisher noch nie festgestellt, obwohl FAGG<sup>17)</sup> ein Niveau bei 281 keV gefunden hat. Diese Tatsache kann dadurch erklärt werden, dass dieses Niveau einen Spin  $I = 1/2$  besitzt. Ist seine Parität positiv, so ist der  $\gamma$ -Übergang vom Typ  $E5$ , ist sie negativ, so ist er vom Typ  $M5$ . Das Einteilchenmodell liefert dafür die folgenden Übergangswahrscheinlichkeiten:

$$T(E5) = 8 \cdot 10^{-9} \text{ sec}^{-1}$$

$$T(M5) = 1,3 \cdot 10^{-9} \text{ sec}^{-1}$$

Vergleicht man diese Werte mit der Wahrscheinlichkeit des direkten  $M4$ -Übergangs in den Grundzustand:

$$T(E5) : T(M4) = 2 \cdot 10^{-6}$$

$$T(M5) : T(M4) = 3 \cdot 10^{-7}$$

Es ist aber zu erwarten, dass die  $\lambda = 5$ -Übergänge gegenüber dem Einteilchenmodell-Wert noch verlangsamt sind.

Wäre noch ein weiteres Niveau mit  $3/2 \leq I \leq 11/2$  vorhanden, so wäre eine Kaskade über dieses Niveau wahrscheinlicher als der direkte Übergang und hätte sich damit deutlich bemerkbar machen müssen.

## 5. Resultate

a) *Totales Koinzidenzspektrum.* Die Auszählung aller Konzidenzen mit dem Raster der Figur 13 liefert das totale Konzidenzspektrum. Dieses setzt sich zusammen aus dem Nulleffekt, den zufälligen Koinzidenzen der 661-keV-Quanten des Cs<sup>137</sup>, den  $\gamma$ -Kaskaden aus radioaktiven Verunreinigungen der Quelle, der doppelten Bremsquantenemission, eventuellen weiteren Störprozessen und schliesslich aus den Ereignissen der Zweiquantenemission. Der Nulleffekt wird fast ausschliesslich von koinzidenten Partikeln oder Quanten der kosmischen Strahlung erzeugt. Diese ergeben vorwiegend sehr grosse Detektorimpulse, die den Verstärker übersteuern und deshalb ganz am Rand der Verteilung erscheinen (siehe Fig. 8).

Aus der Differenz zwischen «Kontrollmessung» und Nulleffekt wurde die Zahl der zufälligen Koinzidenzen bestimmt. Die Differenz zwischen «Messung» und «Kontrollmessung» liefert die experimentelle Bestimmung der Korrekturen. In Figur 13 sind diese Differenzen, bezogen auf 100

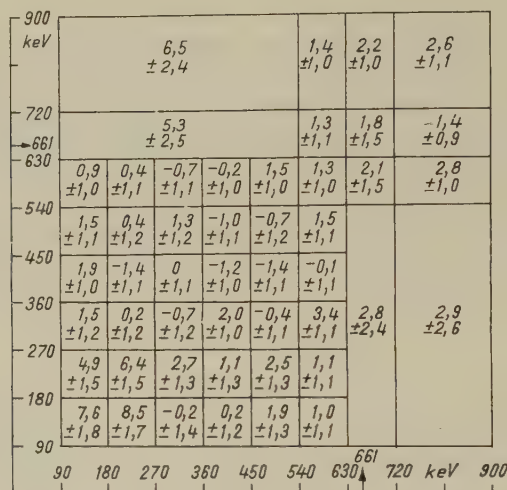


Fig. 13

#### Totales Koinzidenzspektrum

Die eingetragenen Werte sind die Differenzen zwischen «Messung» und «Kontrollmessung» pro 100 h Messdauer mit dem statistischen Fehler.

Stunden eingetragen. Es handelt sich um die Werte aus Messungen, die je 1404 Stunden dauerten.

Ein Vergleich dieser Werte mit der Verteilung der Figur 10 lieferte die Zahl der  $\text{Cs}^{134}$ -Koinzidenzen (Gl. 4.3). Eine weitere Analyse zeigt einen Überschuss im Gebiet niedriger Energien, der durch zweifache Emission von weichen Bremsquanten erklärt werden kann. Der geringe Überschuss im Gebiet der Photospitze des  $\text{Cs}^{137}$ -Spektrums könnte dadurch entstanden sein, dass im Fall «Kontrollmessung» mehr durch Compton-Effekt gestreute Quanten auf den Kristall fallen als im andern Fall. Die «Kontrollmessung» hätte dann einen kleineren Photoanteil.

Innerhalb des statistischen Fehlers sind keine weiteren, merklichen Störeffekte zu finden.

b) *Spektrum der Zweiquantenemission.* Die Verteilung der Koinzidenzen im Energiegebiet

$$661 - 45 \text{ keV} < E \gamma_1 + E \gamma_2 < 661 + 45 \text{ keV}$$

das für die Zweiquantenemission in Frage kommt, ist im folgenden Histogramm Figur 14 dargestellt.

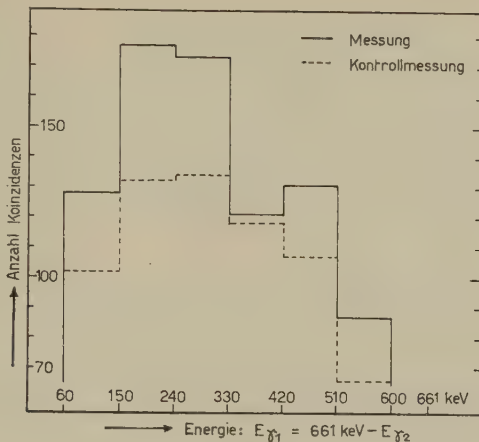


Fig. 14

Koinzidenzen pro Intervall  $\Delta E = 90$  keV in 1404 h

Aus der Zahl  $n^{(2)}$  der ausgewählten Koinzidenzen berechnet sich die Zahl  $N^{(2)}$  von Zweiquantenzerfällen in der Quelle:

$$N^{(2)} = n^{(2)} \frac{1}{2} \frac{4\pi}{\Omega_1} \frac{4\pi}{\Omega_2} \frac{1}{(1 - e^{-\mu_1 L})(1 - e^{-\mu_2 L}) p_1^* p_2^*} \quad (5.1)$$

und aus der Zahl  $n^{(1)}$  von registrierten einfachen Zerfällen die Zahl  $N^{(1)}$  von einfachen Zerfällen in der Quelle

$$N^{(1)} = n^{(1)} \frac{4\pi}{\Omega} \frac{1}{1 - e^{-\mu L}} \quad (5.2)$$

Darin bedeuten

- $\Omega$  der Raumwinkel von der Quelle auf einen Detektor;
- $1 - e^{-\mu L}$  Absorptionswahrscheinlichkeit in einem Detektor;
- $p^*$  der effektive Photoanteil im Szintillationspektrum.

Absorptionswahrscheinlichkeit und effektiver Photoanteil  $p^*$  wurden der Arbeit von MAEDER *et al.*<sup>27)</sup> entnommen. Experimentell bestimmt wurde

$$p^*(661 \text{ keV}) = 37\%$$

Aus den Gleichungen (5.1) und (5.2) kann nun, nach Berücksichtigung aller Korrekturen, das experimentelle Spektrum der Zweiquantenemission, bezogen auf die gesamte Zahl der Zerfälle, bestimmt werden. Das Resultat ist in der Figur 15 dargestellt. Die eingezeichneten Fehlergrenzen sind die Summe aus dem wahrscheinlichen statistischen Fehler und dem Fehler in der Bestimmung der Cs<sup>134</sup>-Koinzidenzen.

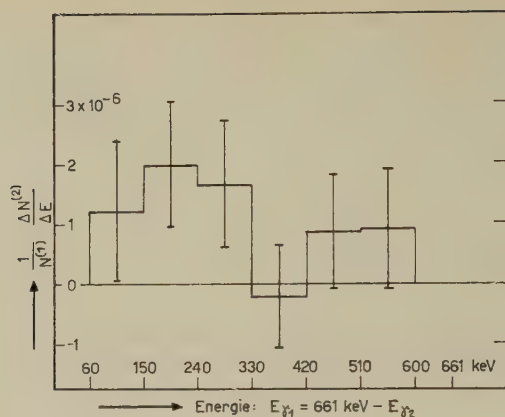


Fig. 15

Experimentelles Spektrum der Zweiquantenemission

Ordinate: Anzahl Zweiquantenzerfälle pro Intervall  $\Delta E = 90$  keV, bezogen auf die Zahl der einfachen Zerfälle

Das integrierte Verhältnis ergibt:

$$\frac{N^{(2)}}{N^{(1)}} = (6,4 \pm 3,1) \cdot 10^{-6}$$

wobei der Fehler wie oben berechnet wurde.

Die Halbwertszeit für Zerfall durch Zweiquanten-Übergang berechnet sich aus derjenigen des einfachen Zerfalls unter Berücksichtigung der Konversion

$$t_{1/2}^{(2)} = t_{1/2}^{(1)} \cdot \frac{N^{(1)}}{N^{(2)}} (1 + \alpha)$$

$$t_{1/2}^{(2)} = (320 \pm 150) \text{ d.}$$

## 6. Schluss

Es wurde experimentell festgestellt, dass die Zweiquantenzerfälle äußerst selten sind. Mit Berücksichtigung der Fehlergrenzen kann mit Sicherheit festhalten, dass die Zahl der Zweiquanten-Übergänge verglichen mit der Zahl der einfachen  $M4$ -Übergänge

$$N^{(2)} : N^{(1)} \leq 10^{-5} \quad \text{ist.}$$

Wie selten dieser Effekt ist, wird dadurch veranschaulicht, dass aus insgesamt 2,5 Milliarden  $\gamma$ -Zerfällen 116 Ereignisse eine solche Zeit- und Energiebeziehung zeigten, dass sie dem Zweiquanten-Zerfall zugeschrieben werden müssen.

Die gemessene Zahl der Zweiquantenübergänge ist doppelt so gross wie der statistische Fehler und um eine Grössenordnung kleiner als die theoretische Abschätzung. Das sind zwei Argumente dafür, dass hier die Zweiquantenemission wirklich nachgewiesen ist.

Eine Kaskade über das unterhalb des isomeren Zustands liegende Niveau des Ba<sup>137</sup> hätte sich in der Messung durch zwei Maxima im Spektrum (Fig. 16) bei 281 und 380 keV bemerkbar machen müssen. Von solchen Maxima ist keine Andeutung vorhanden. Diese Tatsache und die Kleinheit der theoretischen Übergangswahrscheinlichkeit berechtigen zu der Annahme, dass diese Kaskade nur einen unwesentlichen Fehler im Resultat erzeugt.

Wenn das Spektrum der Zweiquantenemission mit einiger Genauigkeit gemessen wäre, so könnten daraus die Multipolkombinationen bestimmt werden, die am Übergang zweiter Ordnung beteiligt sind. Dies würde eine Aussage über Spin und Parität der höher liegenden Niveaux des Ba<sup>137</sup> liefern. Leider ist dies bei den statistischen Fehlern des gemessenen Spektrums nicht möglich. Die Verteilung erscheint ziemlich flach, was nach den zu erwartenden Spektren (Fig. 1) sehr wohl möglich ist.

Eine Beurteilung der Zuverlässigkeit der theoretischen Abschätzungen ist sehr schwierig, weil die Eigenschaften der höher liegenden Niveaux unbekannt sind. Die empirischen Faktoren  $K$  (Tab. 2) sind nur bis auf eine Grössenordnung, einige nur bis auf zwei Grössenordnungen genau<sup>28)</sup>. Weiter sind die Matrixelemente für Übergang in den Zwischenzustand mit unbekannten Phasenfaktoren behaftet, die das Resultat der Summation über alle höheren Niveaux weitgehend unsicher erscheinen lassen. Es ist immerhin bemerkenswert, dass eine Summe der Form

$$\left| \sum \langle i | \mathfrak{M}(1) | z \rangle \langle z | \mathfrak{M}(2) | f \rangle (\omega_z - \omega_f) \right|^2$$

die sich über alle Zwischenzustände mit wachsendem  $\omega_z$  erstreckt, offenbar sehr rasch konvergiert. Sie ist jedenfalls kleiner als der entsprechende Wert des Einteilchenmodells mit vollständiger Überlappung der Kern-Wellenfunktionen  $\langle i |$ ,  $\langle z |$  und  $| f \rangle$  für nur einen Zwischenzustand. Eine Diskussion der theoretischen Aspekte dieser Tatsache würde allerdings den Rahmen dieser Arbeit überschreiten.

Eine gewisse Verbesserung des Experiments wäre noch möglich. Man könnte den Nulleffekt der Koinzidenzen z. B. durch eine Antikoinzidenz-Abschirmung herabsetzen und den Raumwinkel von der Quelle auf den Detektor etwas vergrössern. Es dürfte dann allerdings immer noch keine Streuung von  $\gamma$ -Quanten von einem Szintillator in den anderen auftreten. Wenn als Untergrund nur die zufälligen Koinzidenzen in Frage kommen, so ist der relative statistische Fehler bei je 1000 Stunden «Messung» und «Kontrollmessung» in einem der zu Auszählung verwendeten Felder

$$N^{(2)}: N^{(1)} = 2 \cdot 10^{-7}$$



wenn für den Raumwinkel  $\Omega/4\pi = 5\%$  und für die Einzelstosszahlen  $n_1 = n_2 = 500 \text{ sec}^{-1}$  angenommen wird. Dies wäre bei ideal reiner Quelle und vollständiger Unterdrückung des Nulleffektes die äusserste Grenze des Nachweises, die mit den heutigen Mitteln erreicht werden kann.

Abschliessend möchte ich Herrn Prof. Dr. P. SCHERRER für seine Förderung dieser Arbeit und sein stetes Interesse an ihrem Gelingen meinen herzlichsten Dank aussprechen. Zu grossem Dank verpflichtet bin ich auch Herrn K. ALDER für seine wertvollen Hinweise betreffend die Theorie; RICHARD MÜLLER danke ich für seine Diskussionsbeiträge beim Entwerfen der elektronischen Schaltungen.

### Literaturverzeichnis

- 1) M. GOEPPERT-MAIER, Ann. Physik 9, 273 (1931).
- 2) G. WENTZEL, Hdb. d. Physik, Bd. XXIV (Berlin-Göttingen-Heidelberg: Springer, 1933).
- 3) C. BERSSET, J. HOROWITZ, A. MESSIAH und J. WINTER, J. de Physique 15, 251 (1954).
- 4) K. ALTHOFF, Z. Physik 141, 33 (1955).
- 5) R. G. SACHS, Phys. Rev. 57, 194 (1940).
- 6) T. YUASA, J. LABERRIGUE-FROLOW und L. FEUVRAIS, J. de Physique 18, 494 (1957).
- 7) M. GOLDBABER, C. O. MUEHLHAUSE und S. H. TURKEL, Phys. Rev. 71, 372 (1947).
- 8) M. L. GOLDBERGER, Phys. Rev. 73, 1119 (1948).
- 9) R. H. DALITZ, Proc. Roy. Soc. 206, 521 (1951).
- 10) J. R. OPPENHEIMER und J. S. SCHWINGER, Phys. Rev. 56, 1066 (1939).
- 11) J. EICHLER und G. JACOB, Z. Physik 157, 286 (1959).
- 12) S. A. MOSKOWSKI, Kap. XIII in: Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy, herausgegeben von K. SIEGBAHN (North Holland Publishing Co., Amsterdam 1955).
- 13) K. ALDER, A. BOHR, T. HUUS, B. MOTTELSON und A. WINTHER, Rev. Mod. Phys. 28, 432 (1956).
- 14) E. U. CONDON und G. H. SHORTLEY: Theory of Atomic Spectra (Cambridge University Press, New York 1935).
- 15) R. A. RICCI, Physica 23, 693 (1957).
- 16) C. P. SWANN und F. R. METZGER, Phys. Rev. 100, 1329 (1955).
- 17) L. W. FAGG, Phys. Rev. 109, 100 (1958).
- 18) S. A. MOSKOWSKI, Phys. Rev. 83, 474 (1953).
- 19) D. MAEDER, Nucl. Instr. 2, 299 (1958).
- 20) W. BEUSCH, D. MAEDER und R. MÜLLER, Z. ang. Math. Phys. IXa, 294 (1958).
- 21) H.-J. GERBER, Helv. Phys. Acta 31, 580 (1958).
- 22) J. E. FRANCIS, P. R. BELL und G. G. KELLEY, Nucleonics 12, 55 (März 1954).
- 23) W. HEITLER, The Quantum Theory of Radiation, 3. Aufl., p. 250 (Clarendon Press, Oxford 1954).
- 24) L. KATZ und A. S. PENFOLD, Rev. Mod. Phys. 24, 28 (1952).
- 25) Y. YOSHIKAWA, Nuclear Phys. 5, 122 (1958).
- 26) C. S. WU, Kap. XX (III) in: Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy, loc. cit.
- 27) D. MAEDER, R. MÜLLER und V. WINTERSTEIGER, Helv. Phys. Acta 27, 3 (1954).
- 28) M. GOLDBABER und A. W. SUNYAR, Kap. XVI (II) in: Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy, loc. cit.

# **$\gamma$ - $\gamma$ -Korrelationsmessungen an $^{152}\text{Sm}$ , $^{152}\text{Gd}$ und $^{154}\text{Gd}$ : Spinzuordnung, Mischungsverhältnis und $g$ -Faktor**

von **P. Debrunner** und **W. Kündig**

Physikalisches Institut der ETH, Zürich

15. II. 1960

*Summary.* Angular correlation methods were used to establish the spin sequence and the multipole mixing ratio of several  $\gamma$ -ray cascades in the decay of  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{152m}\text{Eu}$  and  $^{154}\text{Eu}$ , and to measure the nuclear  $g$ -factor of  $^{152}\text{Sm}$ .

For liquid sources, only the 123 keV level of  $^{154}\text{Gd}$  showed attenuation. It was found that each level in the decay of  $^{152}\text{Eu}$  to  $^{152}\text{Sm}$  corresponds to a level of the same spin and parity in the decay of  $^{154}\text{Eu}$  to  $^{154}\text{Gd}$ . In  $\text{Gd}^{154}$  an additional  $2^-$  level of 1721 keV exists, which decays by  $E1$  radiation to the  $2^+$ ,  $K = 2$  and the  $2^+$ ,  $K = 0$  levels. The measurements of the 1290 keV–344 keV and 1100 keV–344 keV cascades in  $^{152}\text{Gd}$  are consistent with a tentative spin assignment of 2 or 3 to the  $(1634 \pm 25)$  keV level and of 4 to the 1444 keV level.

The  $g$ -factor of the first rotational state of  $^{152}\text{Sm}$  was measured using liquid and polycrystalline sources. Assuming the internal field of the paramagnetic electron shell to be proportional to  $T^{-1}$ , the experimentally observed values  $g_{\text{eff}} = 0,38 \pm 0,06$  at  $300^\circ\text{K}$  and  $g_{\text{eff}} = 0,180 \pm 0,065$  at  $1200^\circ\text{K}$  yield a  $g$ -factor  $g_N = 0,115 \pm 0,075$ .

## **I. Einleitung**

Die systematische Untersuchung der Energieniveaux der  $gg$ -Kerne im Gebiet der seltenen Erden hat gezeigt, dass sowohl bei deformierten als auch bei sphärischen Kernen praktisch alle beobachteten Niveaux bis zu Energien oberhalb 1 MeV als kollektive Rotations- und Vibrationszustände aufgefasst werden können.

Die bisher betrachteten Modelle reichen jedoch in ihrer einfachen Form nicht aus, um das gesamte Tatsachenmaterial zu erklären. Insbesondere ergeben sich Schwierigkeiten beim Versuch, die höheren Niveaux als Vibrationszustände zu interpretieren. Häufig weichen auch die relativen  $\gamma$ -Übergangswahrscheinlichkeiten von den theoretischen Werten ab. Diese Unstimmigkeiten hängen damit zusammen, dass die höheren Zustände Beimischungen von Finteilchenzuständen oder anderen Konfigurationen enthalten. Es hat sich ferner gezeigt, dass die  $g$ -Faktoren der Rotationsniveaux im allgemeinen erheblich kleiner sind, als man nach der Abschätzung  $g_N = Z/A$ , die für einen homogen geladenen Kern gilt, erwarten würde. Aus dieser Diskrepanz ergeben sich Aussagen über die Kernstruktur von ähnlicher Tragweite wie aus der Tatsache, dass die Trägheitsmomente der deformierten Kerne stets kleiner sind als die Träg-

heitsmomente starrer Körper. Ein systematisches Studium derartiger Abweichungen von den modellmässigen Voraussagen liefert nützliche Hinweise für die Weiterentwicklung der Theorie.

Unter diesem Gesichtspunkt sind die vorliegenden Untersuchungen an den *gg*-Kernen  $^{152}\text{Gd}$ ,  $^{152}\text{Sm}$  und  $^{154}\text{Gd}$  durchgeführt worden. Sie sollten Aufschluss geben

- a) über die Natur der höheren Niveaux, deren Interpretation noch unsicher ist;
- b) über die Mischungsverhältnisse der kollektiven Vibrationsübergänge, die theoretisch rein elektrischen Charakter haben sollten, praktisch aber auch magnetische Beimischungen enthalten, und
- c) über die *g*-Faktoren von Rotationsniveaux.

Die *gg*-Kerne  $^{152}\text{Gd}$ ,  $^{152}\text{Sm}$  und  $^{154}\text{Gd}$  entstehen durch  $\beta$ -Zerfall bzw. durch *K*-Einfang aus den Europiumisotopen  $^{152}\text{Eu}(13\text{y})$ ,  $^{152\text{m}}\text{Eu}(9,2\text{h})$  und  $^{154}\text{Eu}(16\text{y})$  (siehe Zerfallsschema Fig. 1, ref. <sup>1-17</sup>). Für die Wahl gerade dieser Isotope sprechen verschiedene Gründe: Erstens bestehen möglicherweise Beziehungen zwischen den Vibrationsniveaux des sphärischen Kernes  $^{152}\text{Gd}$  und denjenigen der deformierten Kerne  $^{152}\text{Sm}$  und  $^{154}\text{Gd}$ . Zweitens erwartet man bei diesen Kernen besonders starke Abweichungen von den Voraussagen des kollektiven Modells, da sie an der Grenze des Stabilitätsbereiches der sphärischen Kerne ( $N \leq 88$ ) und der deformierten Kerne ( $N \geq 90$ ) liegen. (Die sprunghafte Zunahme der Deformation zwischen  $N = 88$  und  $N = 90$  ist von MOTTELSON und NILSSON<sup>18</sup>) theoretisch begründet worden.) Drittens enthält das Zerfallsschema dieser Kerne neben mehreren kollektiven Zuständen einige höhere Niveaux, deren Interpretation noch abzuklären ist. Viertens gestattet es die relativ grosse Lebensdauer von 2 nsec des ersten Rotationsniveaus des  $^{152}\text{Sm}$ , den *g*-Faktor dieses Zustandes zu messen. (Das gleiche gilt für das entsprechende Niveau des  $^{154}\text{Gd}$ , doch ist hier die Bestimmung des *g*-Faktors bedeutend schwieriger, da der Einfluss der paramagnetischen Störung nicht genau bekannt ist.)

Wir beschränken uns im folgenden darauf, die experimentellen Methoden und Ergebnisse darzustellen; die Interpretation bleibt der Weiterentwicklung der Theorie vorbehalten.

Unsere Messungen beruhen auf der Methode der  $\gamma$ - $\gamma$ -Richtungskorrelation. Diese gestattet es bekanntlich, die Spizuordnung und das Mischungsverhältnis sukzessiver Übergänge zu bestimmen. Ferner lässt sich in günstigen Fällen der *g*-Faktor angeregter Zustände messen. Da eine Richtungskorrelationsmessung jedoch über den Strahlungscharakter eines Überganges nichts aussagt, ist es im allgemeinen nur auf Grund der Konversionskoeffizienten möglich, zwischen elektrischen und magnetischen Multipolen zu unterscheiden.

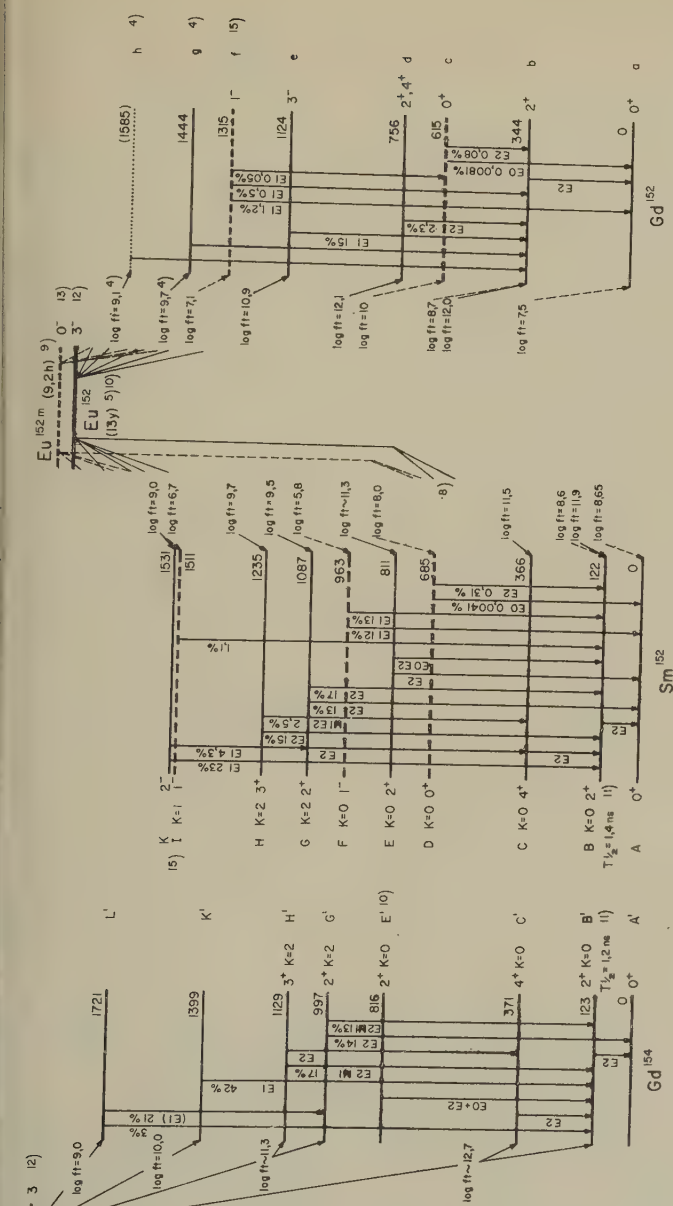


Fig. 1

Zerfallsschema der Europiumisotope  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{153\text{m}}\text{Eu}$  und  $^{154}\text{Eu}$   
 Zusammenfassung der am besten gesicherten Ergebnisse verschiedener Autoren  
 mit den entsprechenden Literaturangaben

Eine wesentliche Voraussetzung für die Interpretation der gemessenen Winkelverteilung  $W(\Theta) = 1 + A_2 G_2 P_2(\cos \Theta) + A_4 G_4 P_4(\cos \Theta)$  ist die Kenntnis der Schwächungskoeffizienten  $G_2$  und  $G_4$ . Unsere Messungen zeigen, dass in wässriger Lösung nur das 1,7-nsec-Niveau des  $^{154}\text{Gd}$  eine merkliche Störung aufweist. Diese rührt her von der Kopplung des Kernmomentes mit dem magnetischen Moment des  $\text{Gd}^{3+}$ -Ions (Stationäre Hyperfeinwechselwirkung). Im  $^{152}\text{Sm}$  ist keine Störung vorhanden, da das magnetische Moment des  $\text{Sm}^{3+}$ -Ions seine Richtung so rasch ändert, dass der Kern nicht zu folgen vermag (Spinrelaxationszeit  $\tau_s < 10^{-13}$  sec).

Bei der Bestimmung des  $g$ -Faktors  $g_N$  aus der Verschiebung der Winkelverteilung in einem Magnetfeld  $H_{\text{ext}}$  ist zu berücksichtigen, dass das effektive Magnetfeld am Ort des Kernes sich zusammensetzt aus dem äusseren Feld  $H_{\text{ext}}$  und aus dem inneren Feld  $H_{\text{int}}$ , das von der paramagnetischen Elektronenhülle erzeugt wird. Da nach GOLDRING und SCHARENBERG<sup>17)</sup> das innere Feld der Suszeptibilität  $\chi_0$  proportional ist, erhält man als Messresultat einen scheinbaren  $g$ -Faktor  $g_{\text{eff}} = g_N(1 + H_{\text{int}}/H_{\text{ext}}) = g_N(1 - \text{const} \cdot \chi_0)$ . Wir konnten am Beispiel des  $^{152}\text{Sm}$  zeigen, dass sich das innere Feld und damit der wahre  $g$ -Faktor experimentell bestimmen lässt, wenn man Gebrauch macht von der Temperaturabhängigkeit der Suszeptibilität  $\chi_0$ , d. h. wenn man  $g_{\text{eff}}$  bei verschiedenen Temperaturen misst. Die Messungen an einer Oxydquelle von  $^{152}\text{Eu}$  ergaben, dass das innere Feld stark temperaturabhängig ist, dass es aber nicht der makroskopisch gemessenen Suszeptibilität des  $\text{Sm}^{3+}$ -Ions im Grundzustand proportional ist. Wir führen dies darauf zurück, dass ein  $K$ -Einfang der  $\gamma$ - $\gamma$ -Kaskade vorangeht, der die Elektronenhülle in einem angeregten Zustand zurücklässt.

## II. Spektren

Alle Messungen an  $^{152}\text{Eu}$  und  $^{154}\text{Eu}$ , die auf  $\gamma$ -Spektroskopie beruhen, werden durch den Umstand erschwert, dass keine isotoopenreinen Eu-Präparate erhältlich sind (vgl. jedoch <sup>3)</sup>). Wir fanden, dass im  $^{154}\text{Eu}$  ( $= ^{152}\text{Eu}$ )-Präparat, das aus einem Gemisch von 95%  $^{153}\text{Eu}$  und 5%  $^{151}\text{Eu}$  durch Bestrahlung im Reaktor hergestellt wurde, ( $33 \pm 5\%$ ) der Zerfälle vom  $^{152}\text{Eu}$  herrühren, während im  $^{152}\text{Eu}$  ( $= ^{154}\text{Eu}$ )-Präparat, hergestellt aus einem Gemisch von 91,9%  $^{151}\text{Eu}$  und 8,1%  $^{153}\text{Eu}$ , die Beimischung von  $\text{Eu}^{154}$  ( $< 1,6\%$ ) vernachlässigbar klein ist.

Da sich mit Szintillationsdetektoren die einzelnen Linien des Spektrums nur unvollständig trennen lassen, und da insbesondere die  $^{154}\text{Eu}$  ( $= ^{152}\text{Eu}$ )-Präparate einen beträchtlichen Anteil an  $^{152}\text{Eu}$  enthalten, müssen die gemessenen Winkelverteilungen im allgemeinen korrigiert werden für den Beitrag unerwünschter Kaskaden. Wir haben deshalb mit der gleichen Apparatur, die für die Richtungskorrelationsmessungen verwendet wurde, die Koinzidenzspektren aller untersuchten  $\gamma$ -Übergänge



aufgenommen und haben sie in die einzelnen Komponenten zerlegt. Auf Grund dieser Zerlegung und der für verschiedene Energieeinstellungen gemessenen Winkelverteilungen ist es möglich, die wahre Winkelverteilung einer Kaskade zu berechnen.

### A. Apparatur, Eichung und Auswertung

Für die Messungen stand eine Koinzidenzapparatur älterer Bauart zur Verfügung, bestehend aus zwei Szintillationsdetektoren, Linearverstärkern, Einkanalanalysatoren und aus der Koinzidenzstufe von  $2\tau_R = 0,3 \mu\text{sec}$  Auflösungszeit. Die Energieauflösung betrug  $\sim 11\%$  bei 511 KeV. Zur Verkürzung der Messzeit wurden im einen Kanal drei Analysatoren mit je einer Koinzidenzstufe parallel geschaltet. Die Impulshöhe wurde in diesem Kanal durch eine Spektrumstabilisierung nach DE WAARD<sup>20)</sup> konstant gehalten. Die Energieeinstellung des andern Kanals konnte automatisch in 50, 100 oder 200 Schritten variiert werden. Für jeden Messpunkt wurden die Koinzidenz- und Einzelstosszahlen entweder auf mechanischen Zählwerken registriert, oder sie wurden direkt mit einem IBM-Output-Writer aus dekadischen Speichern herausgeschrieben. Die zufälligen Koinzidenzen mussten wegen der relativ grossen Auflösungszeit stets berücksichtigt werden.

Die  $\gamma$ -Quanten niedriger Energie wurden mit einem  $1'' \times 1''$  NaJ(Tl)-Kristall registriert, diejenigen mit Energien oberhalb 400 KeV mit einem  $1\frac{1}{2}'' \times 1\frac{1}{2}''$  Kristall.

Die Quelle befand sich zwischen den beiden Kristallen in einem Abstand von 13 mm vom grossen und 8 mm vom kleinen. Zur Verminderung der Rückstreuung wurden 2–4 mm dicke Pb-Absorber zwischen der Quelle und dem grossen Kristall montiert. Die Zerlegung der Koinzidenzspektren in die einzelnen Komponenten erfolgte auf Grund der Eichspektren  $\text{Co}^{60}$  (1332 KeV und 1172 KeV),  $\text{Na}^{22}$  (1276 KeV und 511 KeV),  $\text{Mn}^{54}$  (842 KeV) und  $\text{Cr}^{51}$  (323 KeV), die in der gleichen Anordnung gemessen wurden.

### B. Die Spektren des $^{152}\text{Eu}$

Die Figuren 2–5 zeigen die Einzelstoss- und Koinzidenzspektren des  $^{152}\text{Eu}$ . Die Koinzidenzen mit dem Comptonuntergrund im festen Kanal sind in allen Koinzidenzspektren mit enthalten.

In Tabelle 1 sind die auf Grund der Eichmessungen bestimmten Energien und relativen Intensitäten der höheren  $\gamma$ -Übergänge zusammen mit den Literaturwerten angegeben.

1. *Einzelstösse*: Bei 1265 KeV scheint eine zusammengesetzte Linie mit der relativen Intensität  $(22 \pm 5)$  vorhanden zu sein, deren Zuordnung unsicher ist. Die Doppellinie bei 1100 KeV wurde zerlegt unter der An-

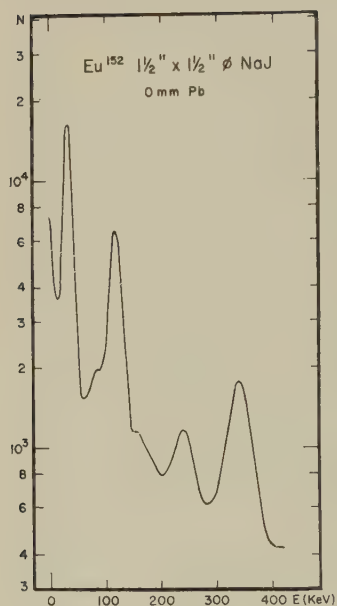


Fig. 2

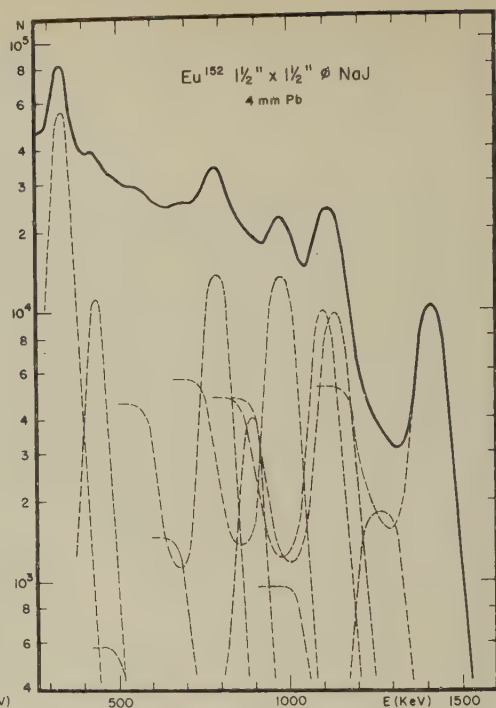
Spektrum des  $^{152}\text{Eu}$ , niedere Energien

Fig. 3

Spektrum des  $^{152}\text{Eu}$ , hohe Energien

nahme, dass die eine Komponente mit der im 122-KeV-Koinzidenzspektrum auftretenden Linie identisch ist. Zwischen 700 KeV und 500 KeV müssen weitere Linien mit einer Gesamtintensität von (15) angenommen werden.

2. *Koinzidenzen mit 122 KeV:* Wie im Einzelspektrum tritt auch hier bei 1260 KeV eine schwache Linie mit der relativen Intensität (14) auf. Ferner müssen zwischen 700 KeV und 500 KeV weitere Linien mit einer Gesamtintensität von (14) angenommen werden.

3. *Koinzidenzen mit 344 KeV:* Die bei  $(1290 \pm 25)$  KeV gefundene Linie ist unseres Wissens noch nie beobachtet worden, während die 1100-KeV-Linie auch von CORK *et al.*<sup>4)</sup> festgestellt wurde. Die in Figur 5 bei 670 KeV  $(5,2 \pm 1,3)$  und 560 KeV  $(6,2 \pm 1,9)$  gezeichneten Linien sind nicht gesichert.

### C. Die Spektren des $^{154}\text{Eu}$

Die Figuren 6 und 7 zeigen das Einzelstoss- und Koinzidenzspektrum des  $^{154}\text{Eu}(+^{152}\text{Eu})$ -Präparates mit und ohne Beimischung von  $^{152}\text{Eu}$

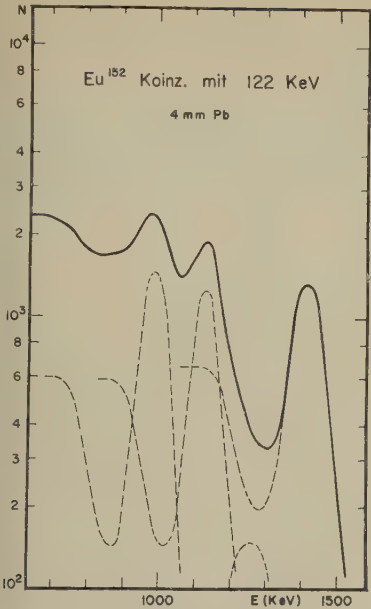


Fig. 4

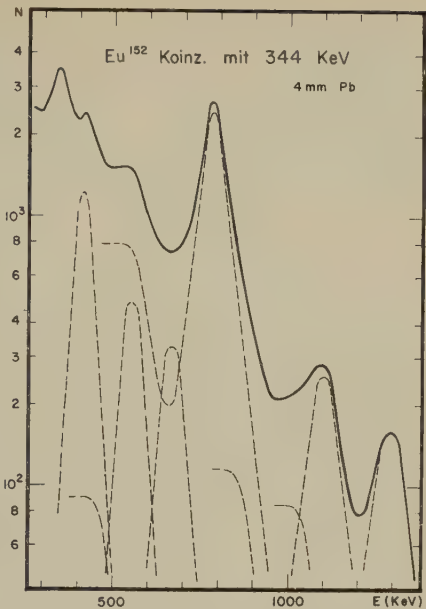


Fig. 5

122 KeV-Koinzidenzspektrum des  $^{152}\text{Eu}$     344 KeV-Koinzidenzspektrum des  $^{152}\text{Eu}$

Tabelle 1  
Energien (in KeV) und relative Intensitäten der wichtigsten  $\gamma$ -Übergänge im  $^{152}\text{Sm}$  und  $^{152}\text{Gd}$

DZHE-LEPOV und ZHUKOVSKY <sup>8)</sup>	NATHAN und HULTBERG <sup>10)</sup>	Eigene Messungen*)			
		Einzelstösse	122-KeV-Koinzidenzen	245-KeV-Koinzidenzen	344-KeV-Koinzidenzen
344(118)	344(126)	338(116±24)			
	411 (10)				415 (12±3)
444 (23)	444 (22)	435 (29±10)	445 (23± 7)	446 (8±2)	
779 (61)	780 (66)	790 (58±15)			780 (58)**)
864 (11)	869 (11)	886 (19± 8)		867 (19)**)	
968 (61)	965 (72)	980 (75±17)	980 (65±14)	995 (3,4±0,9)	
1086 (50)	1087 (57)	1087 (68±15)			
					1100 (7±1,6)
1113 (63)	1113 (62)	(1125) (62±14)	1125 (62±14)		
1205 (7)				1180 (5,4±1,3)	
					1290 (6±1,4)
1401(100)	1409(100)	(1410) (100)	(1410) (100)**)		

\*) Die  $\gamma$ -Energien sind auf  $\pm 2\%$  genau bestimmt.      \*\*) Normierung

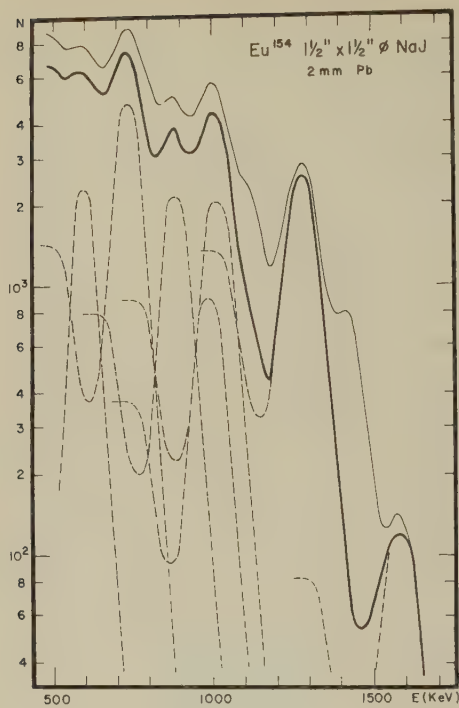


Fig. 6

Spektrum des  $^{154}\text{Eu}$ , hohe Energien. Obere Kurve: Gemisch  $^{154}\text{Eu} + ^{152}\text{Eu}$

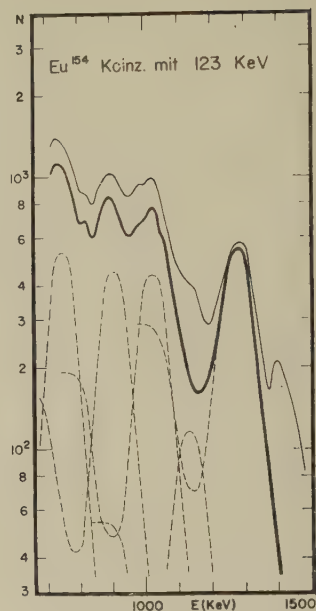


Fig. 7

123 KeV-Koinzidenzspektrum des  $^{154}\text{Eu}$ . Obere Kurve: Gemisch  $^{154}\text{Eu} + ^{152}\text{Eu}$

Tabelle 2

Energien (in KeV) und relative Intensitäten der wichtigsten  $\gamma$ -Übergänge im  $^{154}\text{Gd}$

DZHELEPOV und ZHUKOVSKY <sup>6)</sup>	JULIANO und STEPHENS <sup>3)</sup>	Eigene Messungen*)	
		Einzelstösse	123-KeV-Koinzidenzen
586 (24 $\pm$ 20)	593 (9,5)	590 (30 $\pm$ 11)	
720 (62 $\pm$ 7)	725 (50)		745 (44 $\pm$ 14)
759 (28 $\pm$ 14)	759 < (8,3)	730 (84 $\pm$ 24)	
874 (73 $\pm$ 7)	875 (31)	880 (48 $\pm$ 13)	893 (47 $\pm$ 14)
997 (83 $\pm$ 7)	998 (33)	975 (23 $\pm$ 8)	
1005 (100)	1007 (41)	1005 (58 $\pm$ 19)	1015 (58 $\pm$ 19)
1273 (100)	1277 (100)	1270 (100)	1280 (100)**)
	1600 (7,2)	1580 (6,5 $\pm$ 2)	

\*) Die  $\gamma$ -Energien sind auf  $\pm 2\%$  genau bestimmt. \*\*) Nomierung.

(obere bzw. untere Kurve). Von den gemessenen Spektren des Gemisches wurde das entsprechende Spektrum des  $^{152}\text{Eu}$  in der Weise subtrahiert, dass die 1409-KeV-Linie des  $^{152}\text{Sm}$  verschwindet. Die Stosszahlen der 1276-KeV- und 1409-KeV-Photospitzen verhalten sich im Einzelspektrum wie 100:26, im Koinzidenzspektrum wie 100:30. In Tabelle 2 sind die gefundenen Energien und relativen Intensitäten zusammen mit den Literaturwerten aufgeführt.

### III. Richtungskorrelation

#### A. Quellenherstellung, Messmethode, Korrekturen

Das im Reaktor bestrahlte polykristalline  $\text{Eu}_2\text{O}_3$  wurde entweder direkt in dieser Form verwendet (polykristalline Quellen), oder es wurde in  $\text{HCl}$  bzw.  $\text{HNO}_3$  gelöst (flüssige Quellen). Je etwa 100  $\mu\text{C}$  der aktiven Substanz wurden in Glas- oder Quarzröhrchen von 1 mm Weite und 1/10 mm Wandstärke eingeschmolzen. Die Absorption der 122 KeV-Quanten in der Quelle ist vernachlässigbar.

Für die Untersuchung des  $^{152\text{m}}\text{Eu}$  wurde eine Nitratlösung des natürlichen Isotopengemisches  $^{151,153}\text{Eu}$  in Quarzröhrchen der genannten Dimensionen eingeschmolzen, und die fertigen Röhrchen wurden hierauf im Reaktor von Würenlingen bestrahlt. Eine störende Aktivität von Verunreinigungen im Quarz oder in der Lösung wurde nie festgestellt.

Die Messungen wurden mit der unter II. A beschriebenen Apparatur gemacht. Die Abstände der Kristalle von der Quelle betrugen 43 mm beim grossen ( $1\frac{1}{2}'' \times 1\frac{1}{2}''$ ) und 33 mm beim kleinen ( $1'' \times 1''$ ) Kristall. Die Quelle wurde auf einem kleinen Kreutztisch so lange zentriert, bis die Stosszahlen des beweglichen Kanals für alle Positionen auf  $\pm 1\%$  übereinstimmten. Nach jedem Messintervall von 5 min wurde die Winkelseinstellung automatisch geändert im Zyklus  $90^\circ$ ,  $135^\circ$ ,  $180^\circ$ ,  $180^\circ$ ,  $225^\circ$ ,  $270^\circ$ .

Die Stosszahlen gleicher Winkel wurden aufsummiert. Durch Division der Koinzidenzen durch beide Einzelstosszahlen wurde die Koinzidenzrate gebildet. Unter Berücksichtigung der zufälligen Koinzidenzen wurden daraus die Koeffizienten  $A_2$  und  $A_4$  sowie ihre statistischen Fehler  $\sigma(A_2)$ ,  $\sigma(A_4)$  berechnet (siehe z. B. <sup>21</sup>). Bei längeren Messreihen wurde die Konsistenz der Resultate mit Hilfe des  $\chi^2$ -Tests geprüft.

Die Raumwinkelkorrekturen wurden für beide Kristalle im Energiebereich 50 KeV bis 1500 KeV für verschiedene Abstände berechnet. Die gefundenen Werte wurden nach der Methode von LAWSON und FRAUENFELDER <sup>22</sup>) geprüft.

Für die Auswertung wurden folgende Werte verwendet:



1"-Kristall Abstand 33 mm	$E$ (KeV)	122	245	344
	$Q_2$	0,914	0,926	0,930
	$Q_4$	0,734	0,770	0,783
1 $\frac{1}{2}$ "-Kristall Abstand 43 mm	$E$ (KeV)	1600	1100	780
	$Q_2$	0,916	0,916	0,916
	$Q_4$	0,740	0,739	0,736

### B. Experimentelle Ergebnisse

#### 1. $^{152m}\text{Eu}$ 9,2 h

a) Die 1389 KeV–122 KeV-Kaskade. Abgesehen von der Kaskade 1409 KeV–122 KeV des langlebigen Isomers enthält diese Kaskade keine störenden Beimischungen. Da sich die Messzeit jeweils nur über etwa 4 Halbwertszeiten nach der Bestrahlung erstreckte, war die relative Intensität der 1409-KeV-Linie vernachlässigbar gegenüber der 1389-KeV-Linie.

Der Mittelwert aus drei Messreihen ergab

$$A_2 = -0,221 \pm 22 \quad A_4 = 0,034 \pm 37.$$

b) Die 842 KeV–122 KeV-Kaskade. Da die Intensität der 842-KeV-Linie rund 20mal grösser ist als diejenige der 1389-KeV-Linie, ist der Comptonuntergrund der letzteren vernachlässigbar, abgesehen davon, dass beide Winkelverteilungen praktisch gleich sind.

Der Mittelwert aus drei Messreihen ergab

$$A_2 = -0,245 \pm 21 \quad A_4 = 0,003 \pm 14$$

#### 2. $^{152}\text{Eu}$ (13 y) und $^{154}\text{Eu}$ (16 y)

Die Resultate unserer Messungen und die Unterlagen für die Berechnung der korrigierten Winkelverteilungen sind in den Tabellen 3 und 4 zusammengefasst. In Kolonne 4 sind die bei der gewählten Einstellung der Kanäle 1 und 2 (Kolonne 2) gemessenen Werte  $A_2$  und  $A_4$  mit ihren statistischen Fehlern angegeben, in Kolonne 5 die prozentualen Anteile der verschiedenen Kaskaden, die bei dieser Einstellung gemessen werden. Letztere sind den Koinzidenzspektren Figur 4, 5, 7 entnommen; die Fehlergrenzen entsprechen denjenigen der Tabellen 1 und 2. In Kolonne 7 sind die auf Grund der Zusammensetzung des ersten Kanals (Kolonne 5) aus den experimentellen Winkelverteilungen berechneten reinen Winkelverteilungen angegeben. Die Fehlergrenzen in Kolonne 7 umfassen nebst den statistischen und apparativen Fehlern die von der Unsicherheit der Zusammensetzung (Kolonne 5) herrührenden Fehler.

Um einen Anhaltspunkt zu haben, ob die Zerlegung der gemessenen Winkelverteilungen in die einzelnen Komponenten vernünftige Resultate

liefert, haben wir versucht, die Kaskaden 1409 KeV–122 KeV und 1113 KeV–122 KeV des  $^{152}\text{Sm}$  auch in der  $^{154}\text{Eu}(+^{152}\text{Eu})$ -Quelle zu messen. Die Resultate (siehe Tab. 3, Messungen Nr. 1, 2, 6–8 und Tab. 4, Messungen Nr. 2, 6) stimmen innerhalb der Fehlergrenze überein.

Die Kaskaden 245 KeV–122 KeV im  $^{152}\text{Sm}$  und 248 KeV–123 KeV im  $^{154}\text{Gd}$  wurden nach einer von OFER<sup>14)</sup> beschriebenen Methode gemessen.

### C. Störung der Winkelverteilung

Mit einer Störung der Winkelverteilung ist vor allem im ersten  $2^+$ -Rotationszustand des  $^{152}\text{Sm}$  bzw. des  $^{154}\text{Gd}$  zu rechnen, dessen Lebensdauer  $\tau_N \approx 2 \text{ nsec}$ <sup>11)</sup> beträgt. Dank dieser relativ grossen Lebensdauer ist andererseits der  $g$ -Faktor dieses Zustandes messbar. Alle übrigen Niveaux, auch das 344-KeV-Niveau des  $^{152}\text{Gd}$  mit  $\tau_N \approx 0,1 \text{ nsec}$ <sup>23)</sup>, sind bedeutend kurzlebiger, und die Störung ist entsprechend kleiner.

Sämtliche Messungen, mit Ausnahme der Bestimmung der Schwächungskoeffizienten polykristalliner Quellen (Tab. 3, Nr. 3–5, Tab. 4, Nr. 4, 5), wurden an flüssigen Quellen gemacht, weil in diesen erfahrungsgemäss bei einer Lebensdauer von  $\tau_N \approx 1 \text{ nsec}$  die Störung durch Quadrupolwechselwirkung vernachlässigbar klein ist. Aus dem Vergleich mit den beim  $^{181}\text{Ta}$ <sup>24)</sup> in einer Flußsäurelösung gefundenen Schwächungskoeffizienten  $G_2$  geht hervor, dass die elektrische Störung auch im  $^{152}\text{Sm}$  und im  $^{154}\text{Gd}$  trotz der grossen Quadrupolmomente vernachlässigbar sein wird:

$$^{181}\text{Ta} \quad Q_0 = 6,8 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2 \quad \tau_N(^{5/2}^+) = 15,3 \text{ nsec} \quad G_2 \approx 1 \quad (^{181}\text{Hf in H}_2\text{F}_2)^{24)}$$

$$^{152}\text{Sm} \quad Q_0 = 5,7 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2 \quad \tau_N(2^+) = 2,0 \text{ nsec}$$

$$^{154}\text{Gd} \quad Q_0 = 6,3 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2 \quad \tau_N(2^+) = 1,7 \text{ nsec.}$$

Dies wird bestätigt durch die Beobachtung OFERS<sup>14)</sup>, dass der Schwächungskoeffizient  $G_2$  des 2-nsec-Niveaus im  $^{152}\text{Sm}$  in einer wässrigen Lösung ( $\eta = 0,01 \text{ poise}$ ) gleich gross ist wie in einem Glycerin-Wassergemisch ( $\eta = 5 \text{ poise}$ ), d. h. dass  $G_2 = 1$ .

Andererseits ist aber auch in einer flüssigen Quelle eine merkliche Störung durch die paramagnetische Elektronenhülle möglich, da sowohl im  $\text{Sm}^{3+}$  (Grundzustand  $^6H_{5/2}$ ) als auch im  $\text{Gd}^{3+}$  (Grundzustand  $^8S_{7/2}$ ) eine Hyperfeinwechselwirkung  $A(\mathbf{I} \cdot \mathbf{J})$  vorhanden ist.

Nach ALDER<sup>25)</sup> gilt für eine statische, isotrope Hyperfeinwechselwirkung, wie sie in freien Atomen vorhanden ist:

$$W(\Theta) = \sum_{k=0,2,4,\dots} A_k G_k P_k(\cos \Theta) \quad (1)$$

Tabelle

1 Messung Nr.	2 Energieeinstellung (KeV)		3 Absorber mm Pb	4 Gemessene R. K.		5 Zusamm
	Kanal 1	Kanal 2		$A_2 \pm \sigma(A_2)$	$A_4 \pm \sigma(A_4)$	1409 KeV
1	>1350	122	0	$0,199 \pm 5$	$0,004 \pm 11$	100
2	>1350	122	0	$0,206 \pm 3$	$0,010 \pm 7$	100
3	>1350	122	0	$0,142 \pm 4$	$0,010 \pm 7$	100
4	>1350	122	0	$0,132 \pm 5$	$0,025 \pm 9$	100
5	>1350	122	0	$0,112 \pm 5$	$0,008 \pm 11$	100
6	1030-1205	122	0	$-0,060 \pm 5$	$-0,001 \pm 10$	35,1
7	1030-1205	122	2	$-0,058 \pm 6$	$-0,013 \pm 9$	35,7
8	1030-1205	122	4	$-0,033 \pm 4$	$0,012 \pm 11$	35,7
9	910-1030	122	0	$0,035 \pm 5$	$0,159 \pm 13$	26,6
10	910-1030	122	2	$0,040 \pm 3$	$0,151 \pm 10$	27,2
11	910-1030	122	4	$0,054 \pm 4$	$0,130 \pm 14$	27,9
12	210-280	122	0	$0,0668 \pm 15$	$0,020 \pm 3$	245 KeV $53 \pm 4$
13	210-280	122	9	$0,014 \pm 3$	$0,034 \pm 8$	0
14	>1245	344	2	$0,168 \pm 15$	$0,010 \pm 30$	1290 KeV 100
15	1035-1215	344	2	$-0,194 \pm 11$	$0,046 \pm 24$	15,0 $\pm$ 3
16	700-850	344	2	$-0,079 \pm 3$	$0,008 \pm 7$	4,6 $\pm$ 1

Messung Nr. 1:  $\text{En}(\text{NO}_3)_3$  in  $\text{HNO}_3 + \text{H}_2\text{O}$ ; Nr. 2, 6-16:  $\text{EuCl}_3$  in  $\text{HCl} + \text{H}_2\text{O}$ ; Nr. 3:  $\text{Eu}_2\text{O}_3$  in G  
stall, Kanal 2 mit konischer Pb-Abschirmung

Tabelle

1 Mes- sung Nr.	2 Einstellung (KeV)		3 Absorber mm Pb	4 Gemessene R. K.		5 Zusammen-	
	Kanal 1	Kanal 2		$A_2 \pm \sigma(A_2)$	$A_4 \pm \sigma(A_4)$	1580 KeV	1409 KeV
1	>1540	123	2	$0,137 \pm 7$	$0,000 \pm 14$	$91 \pm \frac{2}{6}$	$9 \pm \frac{6}{2}$
2	1390-1535	123	2	$0,182 \pm 7$	$0,000 \pm 12$	$7,0 \pm 2,2$	$81,0 \pm 8$
3	1205-1380	123	2	$0,155 \pm 2$	$0,002 \pm 4$		$7,7 \pm 0$
4	1205-1380	123	2	$0,087 \pm 6$	$-0,002 \pm 17$		$7,7 \pm 0$
5	1205-1380	123	2	$0,105 \pm 5$	$0,016 \pm 10$		$7,7 \pm 0$
6	1075-1205	123	2	$-0,004 \pm 5$	$-0,015 \pm 10$		$17,7 \pm 1$
7	950-1075	123	2	$0,010 \pm 3$	$0,056 \pm 6$		$7,2 \pm 0$
8	855- 950	123	2	$0,044 \pm 3$	$0,056 \pm 5$		$8,3 \pm 1$
9	210- 280	123	0	$0,0417 \pm 17$	$0,030 \pm 5$	248 KeV:	$43,5 \pm$
10	210- 280	123	9	$0,016 \pm 4$	$0,033 \pm 11$	248 KeV:	0
11	935-1070	720	0	$0,173 \pm 7$	$0,021 \pm 15$	997 KeV:	$68,2 \pm 18$
12	835 930	720	0	$-0,057 \pm 5$	$-0,004 \pm 11$	997 KeV:	$6,7 \pm 1$

Messungen Nr. 4 und 5:  $\text{Eu}_2\text{O}_3$  in Quarzröhrchen, 300°K bzw. 1200°K. Übrige Messungen:  $\text{EuCl}_3$

$\gamma$ -Richtungskorrelationsmessungen am  $^{152}\text{Eu}(13\text{y})$ 

Zerlegung in %		Kaskade (KeV)	Korrigierte R. K.		Bemerkungen
1113 KeV	965 KeV		$A_2 \pm \Delta A_2$	$A_4 \pm \Delta A_4$	
		1409-122	$0,204 \pm 14$	$0,009 \pm 12$	Mittel aus (1) und (2)
		1409-122	$0,138 \pm 12$	$0,015 \pm 12$	Mittel aus (3) und (4)
		1409-122	$0,112 \pm 12$	$0,008 \pm 16$	
$9,8 \pm 10,9$	$5,2 \pm 1,0$	1113-122	$-0,268$	$-0,040$	$\chi^2(A_2) = 20 \quad \chi^2(A_4) = 3$
$8,9 \pm 10,9$	$5,1 \pm 1,0$	1113-122	$-0,270$	$-0,064$	
$8,5 \pm 10,9$	$5,1 \pm 1,0$	1113-122	$-0,221$	$-0,013$	
		1113-122	$-0,250 \pm 60$	$-0,043 \pm 23$	Mittel aus (6), (7), (8)
$4,3 \pm 3,2$	$48,2 \pm 9,7$	965-122	$0,034$	$0,338$	$\chi^2(A_2) = 9 \quad \chi^2(A_4) = 2$
$4,3 \pm 3,2$	$47,4 \pm 9,5$	965-122	$0,043$	$0,327$	
$4,3 \pm 3,2$	$46,5 \pm 9,3$	965-122	$0,070$	$0,288$	
		965-122	$0,049 \pm 30$	$0,312 \pm 80$	Mittel aus (9), (10), (11)
		245-122	$0,111 \pm 14$	$0,007 \pm 15$	
		1290-344	$0,168 \pm 25$	$0,010 \pm 35$	
100 KeV		1100-344	$-0,288 \pm 45$	$0,058 \pm 47$	
$5,3 \pm 17,4$	780 KeV	780-344	$-0,074 \pm 10$	$0,003 \pm 15$	
$7,9 \pm 1,9$	86				

Nr. 300°K; Nr. 4,5:  $\text{Eu}_2\text{O}_3$  in Quarzrohr, 300°K bzw. 1200°K; Nr. 12, 13: Beide Kanäle mit 1"-Kri-

 $\gamma$ -Richtungskorrelationsmessungen am  $^{154}\text{Eu}$ 

Zerlegung in %					Kaskade (KeV)	Korrigierte R. K.	
276 KeV	1113 KeV	1005 KeV	965 KeV	874 KeV		$A_2 G_2 \pm \Delta A_2 G_2$	$A_4 G_4 \pm \Delta A_4 G_4$
11,9					1598-123	$0,130 \pm 15$	$0,000 \pm 20$
84,5					1409-122	$0,192 \pm 21$	$0,000 \pm 22$
84,5	$1 \pm 0,3$				1276-123	$0,168 \pm 13$	$0,002 \pm 12$
84,5	$1 \pm 0,3$				1276-123	$0,093 \pm 15$	$-0,003 \pm 26$
84,5	$1 \pm 0,3$				1276-123	$0,116 \pm 15$	$0,019 \pm 20$
23,0	$27,3 \pm 6,1$	$14,3 \pm 4,8$	0,9		1113-122	$-0,148 \pm 78$	$-0,067 \pm 69$
27,4	$2,5 \pm 0,6$	$43 \pm 14$	$13,0 \pm 2,9$	$5,0 \pm 1,4$	1005-123	$-0,121 \pm 120$	$-0,005 \pm 40$
27,5	$8,7 \pm 2$	$8,3 \pm 2,8$	$3,8 \pm 0,8$	$38,8 \pm 11,5$	874-123	$0,027 \pm 30$	$0,128 \pm 35$
					248-123	$0,075 \pm 13$	$0,026 \pm 26$
					724-997	$0,296 \pm 90$	$0,035 \pm 36$
					724-874	$-0,083 \pm 55$	$-0,007 \pm 20$

+  $\text{H}_2\text{O}$ . Messungen Nr. 9 und 10: Beide Kanäle mit 1"-Kristall, Kanal 2 mit konischer Pb-Abschirmung

$$G_k = \sum_{F, F'} \frac{(2F+1)(2F'+1) |W(IJkF|F'I)|^2}{1 + (\omega_{FF'} \tau_N)^2}, \quad \omega_{FF'} = \omega_A \frac{F(F+1) - F'(F'+1)}{2} \quad (2a, b)$$

Dabei bedeutet  $\hbar\omega_A$  die Energieaufspaltung. In der Spektroskopie wird die Aufspaltung üblicherweise durch die Hyperfeinstrukturkonstante  $A$  in  $\text{cm}^{-1}$  angegeben,  $\omega_A = 2\pi c \cdot A$ . Die Konstanten  $A$  sind für die meisten seltenen Erden gemessen worden (Paramagnetische Resonanz), z. B.:

$^{149}\text{Sm}$	$I = 7/2$ $g_N = 0,55$	$\text{Sm}^{3+}$ $^6H_{5/2}$	$A_{\parallel} = 0,005 \text{ cm}^{-1}$ $A_{\perp} = 0,020 \text{ cm}^{-1}$	$g_{\text{H}} = 0,596$ $g_{\text{H}} = 0,604$	26)
$^{157}\text{Gd}$	$I = 3/2$ $g_N = 0,23$	$\text{Gd}^{3+}$ $^8S_{7/2}$	$A = 0,0005 \text{ cm}^{-1}$	$(g \approx 2)$	27)
$^{159}\text{Tb}$	$I = 3/2$ $g_N = 1,0$	$\text{Tb}^{3+}$ $^7F_6$	$A = 0,209 \text{ cm}^{-1}$	$g = 17,7$	28)
$^{161}\text{Dy}$	$I = 5/2$ $g_N = 0,15$	$\text{Dy}^{3+}$ $^6H_{15/2}$	$A = 0,038 \text{ cm}^{-1}$	$g = 13,6$	29)

In Lösungen und in Kristallen ist die Hyperfeinwechselwirkung im allgemeinen nicht stationär, da der Hüllenspin  $J$  infolge der Kopplung mit dem Kristallfeld und mit benachbarten Spins seine Richtung ändern kann. Die Geschwindigkeit, mit der der Spin seine Richtung ändert, wird durch die Spinrelaxationszeit  $\tau_S$  charakterisiert. Unter der Bedingung, dass  $\omega_A \tau_S \ll 1$ , gilt nach ABRAGAM und POUND<sup>30)</sup>

$$G_k = \frac{1}{1 + \lambda_k \tau_N}, \quad \lambda_k = \frac{2}{3} \tau_S \omega_A^2 I(I+1) J(J+1) [1 - (2I+1) W(I1kI|II)]. \quad (3a, b)$$

Die Spinrelaxationszeit  $\tau_S$  lässt sich experimentell aus der Breite der paramagnetischen Resonanzlinien bestimmen, doch sind für die seltenen Erden wenig zuverlässige Werte bekannt. Man weiss, dass  $\tau_S$  mit abnehmender Temperatur rasch grösser wird, dass aber in einigen Salzen der seltenen Erden  $\tau_S$  so klein ist, dass selbst bei  $20^\circ\text{K}$  keine paramagnetische Resonanz beobachtet werden kann, d. h. dass

$$\tau_S \lesssim \frac{1}{\omega} \approx 10^{-11} \text{ sec.}$$

BAKER und BLEANEY<sup>31)</sup> geben für  $\text{Tb}^{3+}$  bei  $20^\circ\text{K}$  einen Wert von  $\tau_S \approx 3 \cdot 10^{-10} \text{ sec an.}$

In wässrigen Lösungen ist nach ALTSCHULER und VALIEV<sup>32)</sup> die Spinrelaxationszeit proportional zu  $\delta^2 \exp(\delta/2kT)$ , wobei  $\delta$  den Abstand zwischen den Starkniveaux bedeutet, in die der Grundzustand des paramagnetischen Ions im elektrischen Feld der oktaedrisch angeordneten



Wasserdipole aufspaltet. Aus den für die Eisengruppe angegebenen Werten  $\delta \approx 1000 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\tau_S = 1 \text{ nsec}$  lässt sich für die seltenen Erden mit  $\delta \approx 100 \text{ cm}^{-1}$  die Größenordnung von  $\tau_S$  abschätzen,  $\tau_S \approx 4 \cdot 10^{-13} \text{ sec}$ .

Eine Ausnahme bildet das  $\text{Gd}^{3+}$ , in dessen Salzen sich die paramagnetische Resonanz schon bei Zimmertemperatur beobachten lässt. Dies kommt davon her, dass der Grundzustand des  $\text{Gd}^{3+}$ -Ions,  $^8S_{7/2}$ , den Bahndrehimpuls 0 hat. Die Kristallfeldaufspaltung ist von der Größenordnung  $0,05 \text{ cm}^{-1}$ , und die Relaxationszeit beträgt in wässriger Lösung nach der Abschätzung<sup>32)</sup>  $\tau_S \approx 10 \text{ nsec}$ .

Einen experimentellen Wert für die Größenordnung von  $\tau_S$  liefern die Messungen OFERS<sup>33)</sup>, der im  $88 \text{ KeV}$ -2+-Niveau des  $\text{Dy}^{160}$  erstmals eine Störung durch die magnetische Hyperfeinwechselwirkung nachgewiesen hat. OFER fand in wässriger Lösung folgende Schwächungskoeffizienten:

$$G_2 = 0,42 \pm 0,15 \quad G_4 = 0,42 \pm 0,04.$$

Unter der Annahme, dass die Störung im  $^{160}\text{Dy}$  durch die Ausdrücke (3a, b) dargestellt werden kann, findet man aus  $G_4 = 0,42$  und  $A \gtrsim 0,04 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\omega_A \gtrsim 7,55 \cdot 10^9 \text{ sec}^{-1}$ , eine Relaxationszeit  $\tau_S \lesssim 2,2 \cdot 10^{-14} \text{ sec}$ . Der Schwächungskoeffizient  $G_2 = 0,42 \pm 0,15$  ist mit dieser Interpretation nicht verträglich, da aus  $G_4 = 0,42 \pm 0,04$  folgt  $G_2 = 0,71 \pm 0,04$ , doch sind die Fehlergrenzen wahrscheinlich zu knapp bemessen.

Auf Grund dieser Überlegungen erwartet man, dass

1. im  $^{154}\text{Gd}$  trotz der kleinen Hyperfeinaufspaltung ( $\omega_A \approx 8 \cdot 10^7 \text{ sec}^{-1}$  für  $g_N = 0,2$ ) eine Störung vorhanden ist, da  $\tau_S \gtrsim \tau_N$ ;

2. im  $^{152}\text{Sm}$  die Störung vernachlässigbar klein ist, da  $\tau_S$  von der gleichen Größenordnung ist wie im  $^{160}\text{Dy}$ ,  $\tau_S \approx 2 \cdot 10^{-14} \text{ sec}$  (der Bahndrehimpuls, der für die Kopplung mit dem Gitter massgebend ist, ist in beiden Ionen der gleiche,  $L = 5$ ), und da die Hyperfeinaufspaltung im  $^{152}\text{Sm}$  kleiner ist als im  $^{160}\text{Dy}$ . Man erhält nach (3) mit  $g_N = 0,2$ ,  $A \lesssim 0,0073 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\tau_S = 2 \cdot 10^{-14} \text{ sec}$ :  $G_2 = 0,999$ ,  $G_4 = 0,996$ .

Die Experimente bestätigen diese Erwartungen vollauf. GOLDRING und SCHARENBERG<sup>17)</sup> haben bei Coulombanregung in flüssigen Targets folgende Schwächungskoeffizienten gemessen:

$^{152}\text{Sm}$	$G_2 = 1,00 \pm 0,035$	$\tau_N = 2,02 \text{ nsec}$
$^{154}\text{Sm}$	$G_2 = 1,1 \pm 0,1$	$(\tau_N = 3,80 \text{ nsec})$
$^{154}\text{Gd}$	$G_2 = 0,5 \pm 0,06$	$\tau_N = 1,73 \text{ nsec}$
$^{156}\text{Gd}$	$G_2 = 0,6 \pm 0,04$	$(\tau_N = 2 \text{ nsec})$

Diese Resultate lassen sich nicht ohne weiteres auf unsere Messungen anwenden, da in unserem Fall ein  $K$ -Einfang bzw. ein  $\beta$ -Zerfall der  $\gamma$ - $\gamma$ -Kaskade vorangeht. Wir haben deshalb auf Grund plausibler Annahmen

über Spins und Multipolaritäten zweier Kaskaden die Schwächungskoeffizienten aus unseren eigenen Messungen ermittelt:

1. Die Kaskaden 245 KeV–122 KeV im  $^{152}\text{Sm}$  und 248 KeV–123 KeV im  $^{154}\text{Gd}$  sind reine  $4^+ \xrightarrow{(E2)} 2^+ \xrightarrow{(E2)} 0^+$  Kaskaden mit  $A_2 = 0,102$ ,  $A_4 = 0,009$ . Der Vergleich mit den experimentellen Werten

$$^{152}\text{Sm}: A_2 = 0,111 \pm 14 \quad A_4 = 0,007 \pm 15$$

$$^{154}\text{Gd}: A_2 = 0,075 \pm 13 \quad A_4 = 0,026 \pm 26$$

ergibt die Schwächungskoeffizienten

$$^{152}\text{Sm}: G_2 = 1,09 \pm 0,14$$

$$^{154}\text{Gd}: G_2 = 0,735 \pm 0,127.$$

2. Die Kaskaden 965 KeV–122 KeV im  $^{152}\text{Sm}$  und 874 KeV–123 KeV im  $^{154}\text{Gd}$  lassen sich nur als  $2^+ \xrightarrow{(E2, M1)} 2^+ \xrightarrow{(E2)} 0^+$  Kaskaden mit  $|\delta| > 5$  interpretieren,  $0,310 < A_4 < 0,323$ . Der Vergleich mit den experimentellen Werten

$$^{152}\text{Sm}: A_4 = 0,312 \pm 80 \quad ^{154}\text{Gd}: A_4 = 0,128 \pm 35$$

ergibt die Schwächungskoeffizienten

$$^{152}\text{Sm}: G_4 = 0,97 \pm 0,25 \quad ^{154}\text{Gd}: G_4 = 0,397 \pm 0,108.$$

Man findet, dass im  $^{152}\text{Sm}$  die Störung sowohl bei der Coulombanregung als auch bei der  $\gamma$ - $\gamma$ -Korrelation vernachlässigbar ist, da  $\omega_A^2 \tau_S \tau_N \ll 1$ .

Die Schwächungskoeffizienten  $G_2$  und  $G_4$  des  $^{154}\text{Gd}$  sind verträglich mit der Annahme, dass die stationäre  $A(I \cdot J)$ -Kopplung (2) für die Störung verantwortlich ist<sup>17)</sup>. Man findet als beste Werte

$$\omega_A = (8,7 \pm 1,7) \cdot 10^7 \text{ sec}^{-1}, \quad G_2 = 0,67 \pm 0,09 \quad G_4 = 0,46 \pm 0,09.$$

Die Störung ist etwas kleiner als die bei Coulombanregung gefundene. Der Wert  $\omega_A = 8,7 \cdot 10^7 \text{ sec}^{-1}$  entspricht einem  $g$ -Faktor  $g_N = 0,215$  des  $^{154}\text{Gd}$ .

Im Zusammenhang mit den  $g$ -Faktormessungen haben wir die Schwächungskoeffizienten von polykristallinen Oxydquellen bei Zimmertemperatur und bei  $1200^\circ\text{K}$  gemessen:

	$^{152}\text{Sm}$	$^{154}\text{Gd}$
Flüssige Quelle	$G_2 = 1$	$G_2 = 0,67 \pm 0,09$
Oxyd $300^\circ\text{K}$	$G_2 = 0,676 \pm 0,075$	$G_2 = 0,37 \pm 0,08$
Oxyd $1200^\circ\text{K}$	$G_2 = 0,550 \pm 0,070$	$G_2 = 0,46 \pm 0,09$

Bei Coulombanregung wurden in Oxydtargets folgende Schwächungskoeffizienten gefunden<sup>17)</sup>:

<sup>152</sup> Sm: $G_2 = 0,61 \pm 0,03$	$Q_0 = 5,7 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$	$\tau_N = 2,0 \text{ nsec}$
<sup>154</sup> Sm: $G_2 = 0,53 \pm 0,03$	$Q_0 = 6,7 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$	$(\tau_N = 3,8 \text{ nsec})$
<sup>156</sup> Gd: $G_2 = 0,28 \pm 0,03$	$Q_0 = 8,8 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$	$(\tau_N = 2 \text{ nsec})$

Es zeigt sich, dass in allen Oxydquellen eine starke Störung vorhanden ist. Die Schwächungskoeffizienten sind rund halb so gross wie in den flüssigen Quellen. Da die magnetische Störung bei den Gadoliniumisotopen in flüssiger Umgebung ihren Maximalwert erreicht (Stationäre  $A(\mathbf{I} \cdot \mathbf{J})$ -Kopplung), kann die zusätzliche Störung, die in den polykristallinen Quellen auftritt, nur durch eine statische elektrische Quadrupolwechselwirkung erklärt werden. Beim <sup>152</sup>Sm lässt sich, solange die Bedingung  $\omega_A^2 \tau_S \tau_N \ll 1$  erfüllt ist, der Ausdruck

$$G_2 = \frac{1}{35} \left[ 13 + \frac{2}{1 + (\omega_0 \tau_N)^2} + \frac{12}{1 + (3\omega_0 \tau_N)^2} + \frac{8}{1 + (4\omega_0 \tau_N)^2} \right] \quad (4)$$

für eine reine Quadrupolwechselwirkung in polykristalliner Quelle anwenden<sup>30)</sup>. Mit  $G_2 = 0,676$  findet man  $\omega_0 = 1,65 \cdot 10^8 \text{ sec}^{-1}$ .

Beim <sup>154</sup>Gd kann die Störung durch die Hyperfeinwechselwirkung dadurch aufgehoben werden, dass man Kernspin und Hüllenspin durch ein äusseres Magnetfeld parallel zum ersten  $\gamma$ -Quant entkoppelt. Die dazu notwendige Bedingung<sup>30)</sup>

$$\omega_J = g_E \mu_B H / \hbar \gg \omega_A, \frac{1}{\tau_S},$$

wobei  $\omega_J$  die Larmorfrequenz des Hüllenspins im Magnetfeld  $H$  bedeutet, lässt sich beim <sup>154</sup>Gd leicht erfüllen. Untersuchungen dieses Effektes sind im Gange.

#### D. Interpretation

Die Interpretation der ungestörten Winkelverteilungen ist in den Tabellen 5 und 6 zusammengefasst. Zum Vergleich sind die Resultate anderer Autoren und die Konversionskoeffizienten angegeben. Die Koeffizienten  $A_2$  und  $A_4$  sind den Tabellen 3 und 4 entnommen. Als Schwächungskoeffizienten haben wir die im Abschnitt C gefundenen Werte verwendet:

123-KeV-Niveau des <sup>154</sup> Gd: $G_2 = 0,67 \pm 0,09$	$G_4 = 0,46 \pm 0,09$
Alle übrigen Niveaux: $G_2 = 1$	$G_4 = 1$

Die Fehlergrenzen wurden der Unsicherheit der Koeffizienten  $G_2$  und  $G_4$  entsprechend erhöht. In den Kolonnen «Spinzuordnung» und «Mischungs-

Tabelle 5. Interpretation der Winkelverteilungen des  $^{153}\text{Sm}$  und  $^{152}\text{Gd}$ 

R. K. Nr.	Isotop	Kaskade (KeV)	$A_2 \pm \Delta A_2$	$A_4 \pm \Delta A_4$	$10^3 \alpha_K^{\text{exp}}$	$10^3 \alpha_K^{\text{theor}}$				Spinzu- ordnung	Mischungs- verhältnis $\delta$
						E1	E2	E3	M1		
1	$^{152}\text{Sm}$	1389-122	$-0,221 \pm 22$ $-0,222 \pm 19$	$0,034 \pm 37$ $0,006 \pm 28^{15)}$	$0,4 \pm 0,2^{19)}$	0,50	1,10	2,2	1,6	$1^- - 2^+ - 0^+$ $(3^- - 2^+ - 0^+)$	$0 < \delta < 0,044$ $(0,16 < \delta < 0,22)$
2	$^{152}\text{Sm}$	842-122	$-0,245 \pm 21$ $-0,231 \pm 13$	$0,003 \pm 14$ $0,004 \pm 18^{15)}$	$1,3 \pm 0,1^{19)}$	1,2	3,0	6,2	5,0	$1^- - 2^+ - 0^+$	$-0,016 < \delta < 0,024$
3	$^{152}\text{Sm}$	1409-122	$0,204 \pm 14$ $0,210 \pm 20$ $0,191 \pm 11$	$0,009 \pm 12$ $0,020 \pm 30^{14)}$ $0,003 \pm 15^{16)}$	$0,49 \pm 0,04^{10)}$	0,49	1,07	2,1	1,6	$2^- - 2^+ - 0^+$	$-0,08 < \delta < 0,04$
4	$^{152}\text{Sm}$	1113-122	$-0,250 \pm 60$ $-0,140 \pm 40$ $-0,169 \pm 24$	$-0,043 \pm 23$ $-0,080 \pm 20^{14)}$ $-0,064 \pm 22^{16)}$	$1,8 \pm 0,3^{10)}$	0,73	1,70	3,6	2,7	$3^+ - 2^+ - 0^+$	$\delta > 7$
5	$^{152}\text{Sm}$	965 122	$0,049 \pm 30$ $-0,020 \pm 20$ $0,023 \pm 35$	$0,312 \pm 80$ $0,220 \pm 50^{14)}$ $0,375 \pm 50^{16)}$	$2,2 \pm 0,2^{10)}$	0,93	2,24	4,7	3,7	$2^+ - 2^+ - 0^+$	$5 < \delta < 8,5$
6	$^{152}\text{Sm}$	245-122	$0,111 \pm 14$ $0,110 \pm 10$ $0,089 \pm 13$	$0,007 \pm 15$ $0,000 \pm 20^{14)}$ $0,010 \pm 17^{16)}$						$4^+ - 2^+ - 0^+$	$-0,04 < \delta < 0$
7	$^{152}\text{Gd}$	1290-344	$0,168 \pm 25$	$0,010 \pm 35$							
8	$^{152}\text{Gd}$	1100-344	$-0,288 \pm 45$	$0,058 \pm 47$						$2^- - 2^+ - 0^+$ $3^- - 2^+ - 0^+$ $4^- - 2^+ - 0^+$ $4^- - 2^+ - 0^+$	$-0,14 < \delta < -0,07$ $-0,42 < \delta < -0,32$ $-0,18 < \delta < -0,07$ $8 < \delta, \delta < -25$
9	$^{152}\text{Gd}$	780-344	$-0,074 \pm 10$ $-0,065 \pm 10$ $-0,081 \pm 13$	$0,003 \pm 15$ $0,010 \pm 10^{14)}$ $0,014 \pm 19^{16)}$	$1,5 \pm 0,1^{10)}$	1,51	3,89	8,7	7,1	$3^- - 2^+ - 0^+$	$0,55 < \delta < 0,77$ $-0,01 < \delta < 0,02$

Tabelle 6. Interpretation der ungestörten Winkelverteilungen des  $^{154}\text{Gd}$ 

R. K. Nr.	Kaskade (KeV)	$A_2 \pm \Delta A_2$	$A_4 \pm \Delta A_4$	$10^3 \alpha_K^{\text{exp}}$	$10^3 \alpha_K^{\text{theor}}$				Spinzuordnung	Mischungsverhältnis $\delta$
					E1	E2	E3	M1		
1	1598-123	$0,194 \pm 34$	$0,000 \pm 43$						2 - 2 <sup>+</sup> -0 <sup>+</sup> (3 - 2 <sup>+</sup> -0 <sup>+</sup> ) (4 - 2 <sup>+</sup> -0 <sup>+</sup> )	-0,12 < $\delta$ < -0,03 (-0,55 < $\delta$ < -0,34) (-1,3 < $\delta$ < -0,9) (-0,25 < $\delta$ < -0,11)
2	1276-123	$0,251 \pm 39$	$0,000 \pm 43$	$0,71^{(6)}$	0,63	1,48	2,8	2,2	2 <sup>-</sup> -2 <sup>+</sup> -0 <sup>+</sup> (3 <sup>-</sup> -2 <sup>+</sup> -0 <sup>+</sup> )	$ \delta  < 0,055$ (-0,65 < $\delta$ < -0,48)
3	1005-123	$-0,181 \pm 51$ $53$	$-0,011 \pm 87$	$3,4^{(6)}$ $4,4^{(8)}$	0,96	2,34	4,7	3,8	3 <sup>+</sup> -2 <sup>+</sup> -0 <sup>+</sup> (1 - 2 <sup>+</sup> -0 <sup>+</sup> ) (4 - 2 <sup>+</sup> -0 <sup>+</sup> )	$ \delta  > 11$ (0,07 < $\delta$ < 0,27)
4	874-123	$0,040 \pm 48$ $63$	$0,278 \pm 94$	$2,1^{(6)}$ $5,8^{(8)}$	1,23	3,02	6,5	5,3	2 <sup>+</sup> -2 <sup>+</sup> -0 <sup>+</sup>	$5 < \delta < 14$
5	248-123	$0,112 \pm 24$	$0,056 \pm 56$						4 <sup>+</sup> -2 <sup>+</sup> -0 <sup>+</sup>	(0)
6	724-997	$0,296 \pm 90$ $53$	$0,035 \pm 36$	$997 \{3,5^{(6)}\}$ KeV $\{2,1^{(8)}\}$	0,98	2,40	4,7	3,8	2 <sup>-</sup> -2 <sup>+</sup> -0 <sup>+</sup>	-0,01 < $\delta$ < 0,21
7	724-874	$-0,083 \pm 20$	$-0,007 \pm 20$	$724 \{2,4^{(6)}\}$ KeV $\{2,8^{(8)}\}$	1,74	4,57	10,8	8,5	2 <sup>-</sup> -2 <sup>+</sup> -2 <sup>+</sup>	$\delta_{874} > 9$ $\delta_{874} < -40$ ( $\delta_{724}$ siehe R. K. Nr. 6)



verhältnis» sind in Klammern auch solche Werte aufgeführt, die zwar mit der gemessenen Winkelverteilung verträglich sind, die aber auf Grund anderer Messungen ausgeschlossen werden können.

Zu den einzelnen Kaskaden in den Tabellen 5 und 6 sind folgende Bemerkungen zu machen (vgl. Zerfallsschema Fig. 1 und 8):

Tabelle 5  $^{152}\text{Sm}$  und  $^{152}\text{Gd}$

1.  $^{152}\text{Sm}$  1389 KeV–122 KeV: WOOD<sup>15)</sup> hat die Polarisationskorrelation dieser Kaskade gemessen und kommt zum Schluss, dass das 1511-KeV-Niveau I Spin und Parität  $1^-$  hat.

2.  $^{152}\text{Sm}$  842 KeV–122 KeV: Die Zuordnung  $1^-$  für das 963-KeV-Niveau  $F$  folgt aus den von NATHAN und WAGGONER<sup>2)</sup> gemessenen Konversionskoeffizienten des 842-KeV- und des 963-KeV-Überganges.

3.  $^{152}\text{Sm}$  1409 KeV–122 KeV: Diese Kaskade wurde von LIDE und WIEDENBECK<sup>16)</sup> als  $3^- - 2^+ - 0^+$  Übergang interpretiert, doch scheint uns das Argument, dass die von diesen Autoren gemessene Korrelation  $3 \xrightarrow{(1170 \text{ KeV})} 4^+ \xrightarrow{(245 \text{ KeV})} 2^+$  vom gleichen Anfangszustand ausgeht wie die Kaskade 1409 KeV–122 KeV, nicht stichhaltig. Der Mittelwert der drei angegebenen Messungen

$$A_2 = 0,198 \pm 8$$

ergäbe mit der Zuordnung  $3 - 2 - 0$  einen negativen  $A_4$ -Term,  $A_4 = -0,012$ ,  $\delta = -0,43$  (15,6% M2,  $\alpha_K^{\text{theor}} = 9,8 \cdot 10^{-4}$ ), d. h. diese Interpretation ist weder mit der gemessenen Winkelverteilung noch mit dem experimentellen Konversionskoeffizienten  $\alpha_K^{\text{exp}} = (4,9 \pm 0,4) \cdot 10^{-4}$  10) verträglich.

4.  $^{152}\text{Sm}$  1113 KeV–122 KeV: Der Mittelwert der drei angegebenen Messungen

$$A_2 = -0,167 \pm 22 \quad A_4 = -0,064 \pm 16$$

ist verträglich mit der Zuordnung  $3^+ \xrightarrow{(E2, M1)} 2^+ \xrightarrow{(E2)} 0^+$ ,  $-60 < \delta < -14$ .

5.  $^{152}\text{Sm}$  965 KeV–122 KeV: Der Mittelwert der drei angegebenen Messungen

$$A_2 = 0,017 \pm 23 \quad A_4 = 0,300 \pm 50$$

ist verträglich mit der Zuordnung  $2^+ \xrightarrow{(E2, M1)} 2^+ \xrightarrow{(E2)} 0^+$ ,  $6,7 < \delta < 11$ .

6.  $^{152}\text{Sm}$  245 KeV–122 KeV: Alle Messungen sind verträglich mit der Zuordnung  $4^+ \xrightarrow{(E2)} 2^+ \xrightarrow{(E2)} 0^+$ ,  $\delta = 0$ ,  $A_2 = 0,102$ ,  $A_4 = 0,009$ .

7.  $^{152}\text{Gd}$  1290 KeV–344 KeV: Das  $(1634 \pm 25)$  KeV-Niveau  $h$  ist offensichtlich mit dem Niveau  $(1585 \pm 40)$  KeV identisch, das von CORK *et al.*<sup>4)</sup>

auf Grund der Zerlegung des  $^{152}\text{Eu}$ - $\beta$ -Spektrums gefunden wurde. Nach diesen Autoren ist der  $\log ft$ -Wert des  $\beta$ -Überganges ins 3--Niveau  $e$  grösser als derjenige des Überganges ins Niveau  $h$ , so dass man versuchsweise annehmen kann, dass auch für den letzteren die Auswahlregeln  $\Delta I = 0$  oder 1,  $\pi_i = \pi_f$  gelten. Dies führt zum Schluss, dass das Niveau  $h$  negative Parität hat. Der Spin kann nach den Richtungskorrelationsmessungen die Werte 2, 3 oder 4 haben. Wenn man negative Parität annimmt, kann der Wert  $I = 4$  ausgeschlossen werden, da eine Kaskade  $4- \xrightarrow{(M2, E3)} 2+ \xrightarrow{(E2)} 0+$  mit dem Mischungsverhältnis  $-0,18 < \delta < -0,07$  ( $> 97\%$   $M2$ ) sehr unwahrscheinlich ist. Es bleiben also die Möglichkeiten

$$2- \xrightarrow{(E1, M2)} 2+ \xrightarrow{(E2)} 0+ \quad -0,14 < \delta < -0,07$$

bzw.  $3- \xrightarrow{(E1, M2)} 2+ \xrightarrow{(E2)} 0+ \quad -0,42 < \delta < -0,32.$

Eine Konversionslinie des 1290-KeV-Überganges ist noch nie beobachtet worden, und es sind auch keine weiteren Übergänge vom Niveau  $h$  aus mit Sicherheit nachgewiesen worden. (Die von CORK *et al.*<sup>4)</sup> gefundene 507-KeV-Linie lässt sich zwischen  $h$  und  $e$  einordnen, möglicherweise aber auch zwischen  $e$  und  $c$ .)

8.  $^{152}\text{Gd}$  1100 KeV–344 KeV: Für die Parität des 1444-KeV-Niveaus  $g$  gilt das gleiche wie das unter 7. über das Niveau  $h$  gesagte: Man kann versuchsweise annehmen, dass das Niveau  $g$  negative Parität hat. Nach der in Tabelle 5 angegebenen Interpretation der gemessenen Winkelverteilung wäre dann der 1100-KeV-Übergang eine Mischung von  $E3$  und  $M2$  mit  $8 < \delta$ ,  $\delta < -25$  oder  $0,55 < \delta < 0,77$ . Eine Konversionslinie dieses Überganges ist noch nie beobachtet worden, wahrscheinlich deshalb, weil es sehr schwierig ist, sie neben den mindestens 5mal stärkeren Konversionslinien des 1087-KeV- und des 1113-KeV-Überganges im  $^{152}\text{Sm}$  mit Sicherheit nachzuweisen.

9.  $^{152}\text{Gd}$  780 KeV–344 KeV: Alle drei Messungen sind verträglich mit der Zuordnung

$$3- \xrightarrow{(E1)} 2+ \xrightarrow{(E2)} 0+, \quad \delta = 0, \quad A_2 = 0,071 \quad A_4 = 0.$$

Tabelle 6  $^{154}\text{Gd}$

1. 1598 KeV–123 KeV: Wir haben nach JULIANO und STEPHENS<sup>3)</sup> angenommen, dass die beiden Kaskaden 1598 KeV–123 KeV und 724 KeV–997 KeV vom gleichen Niveau  $L'$  ausgehen (siehe Fig. 1 und 8). Diese Annahme ist keineswegs gesichert, da die Energie der 1598-KeV-Linie bestenfalls auf  $\pm 15$  KeV genau bekannt ist (nach unseren Messungen  $(1580 \pm 25)$  KeV), sie ist aber mit den Richtungskorrelationsmessungen (Tab. 6, Nr. 1, 6 und 7) verträglich, falls man dem Niveau  $L'$  den Spin

$I = 2$  zugeordnet. Nach HICKMANN und WIEDENBECK<sup>16)</sup> hat das Niveau  $L'$  den Spin  $I = 5$ .

2. 1276 KeV–123 KeV: Da die 1276-KeV-Linie relativ stark ist und von andern Linien sauber getrennt werden kann, ist ihr Konversionskoeffizient bedeutend besser messbar als derjenige der tiefer liegenden Linien 1005 KeV, 997 KeV, 874 KeV und 724 KeV. Aus dem experimentellen Wert von DZHELEPOV und ZHUKOVSKY<sup>6)</sup> geht hervor, dass die 1276-KeV-Linie ein reiner  $E1$ -Übergang ist. Dies ist nur dann mit unseren Messungen verträglich, wenn man dem Niveau  $K'$  Spin und Parität 2<sup>+</sup> zuordnet. Der nach ref.<sup>16)</sup> ebenfalls mögliche Spin  $I = 3$  kommt nicht in Frage, weil sich aus dem zugehörigen Mischungsverhältnis  $-0,65 < \delta < -0,48$  ein Konversionskoeffizient  $\alpha_K^{\text{theor}} \approx 1,5 \cdot 10^{-3}$  ergäbe, der im Widerspruch steht zu dem experimentellen Wert  $\alpha_K^{\text{exp}} = 0,71 \cdot 10^{-3}$ .

3. 1005 KeV–123 KeV: Nach ref.<sup>16)</sup> hat das 1129-KeV-Niveau  $H'$  den Spin  $I = 3$ . Unsere eigenen Messungen liefern keine eindeutige Spinzuordnung, da die Messfehler sehr gross sind. Sie sind jedoch verträglich mit der Annahme, dass die beiden Niveaux  $G'$  und  $H'$ , die den Niveaux  $G$  und  $H$  des <sup>152</sup>Sm entsprechen, wie diese einem  $\gamma$ -Vibrationsband  $K = 2$ ,  $I = 2^+$  und  $3^+$  angehören. Der Spin  $2^+$  des Niveaus  $G'$  ist gesichert, ebenso der  $E2$ -Charakter des Übergangs  $G' \rightarrow B'$  (s. u., Nr. 4 und 7), der für einen Übergang  $(2^+, K = 2) \rightarrow (2^+, K = 0)$  typisch ist.

Unter der Voraussetzung, dass diese Interpretation richtig ist, ergibt sich die Zuordnung  $3^+ \xrightarrow{(E2, M1)} 2^+ \xrightarrow{(E2)} 0^+$ ,  $|\delta| \geq 11$ .

Der Konversionskoeffizient<sup>6)</sup> des 1005-KeV-Überganges liegt näher beim  $M1$ -Wert, doch darf man dem nicht allzuviel Gewicht beimessen.

4. 874 KeV–123 KeV: Bei der Bestimmung des Schwächungskoeffizienten  $G_4$  haben wir Gebrauch gemacht von der Tatsache, dass der grosse  $P_4$ -Term  $A_4 G_4 = 0,128 \pm 39$  der gemessenen Winkelverteilung nur mit der Spinfolge  $2 - 2^+ - 0^+$  vereinbar ist. Die Resultate von HICKMANN und WIEDENBECK<sup>16)</sup> bestätigen diese Zuordnung. Die korrigierte Winkelverteilung liefert das Mischungsverhältnis  $5 < \delta < 14$ .

5. 248 KeV–123 KeV: Bei der Bestimmung des Schwächungskoeffizienten  $G_2$  wurde vorausgesetzt, dass die 248-KeV-Linie ein reiner  $E2$ -Übergang sei.

6. 724 KeV–997 KeV: Das 997-KeV-Niveau  $G'$  hat nach der Messung Nr. 4 den Spin  $I = 2$ . Die positive Parität folgt u. a. aus dem Konversionskoeffizienten<sup>6)</sup> des 997-KeV-Überganges, der dem  $E2$ -Wert bedeutend näher liegt als dem  $M2$ -Wert  $\alpha_K^{\text{theor}} = 9,3 \cdot 10^{-3}$ . Der Konversionskoeffizient des 724-KeV-Überganges stimmt am ehesten mit dem  $E1$ -Wert überein, so dass man dem Niveau  $L'$  negative Parität zuschreiben muss.

7. 724 K $\epsilon$ V-874 KeV: Nach der Beziehung

$$A_{2k}(I_1 \xrightarrow{\delta_1} I \xrightarrow{\delta_2} I_2) = A_{2k}'(I_1, \delta_1, I) A_{2k}'(I_2, \delta_2, I) \quad (\text{s. z. B. ref. 16})$$

sind die drei Korrelationen (4), (6) und (7) folgendermassen miteinander verknüpft:

(4)  $(2 \xrightarrow{\delta} 2 \longrightarrow 0)$

$$A_2 = (-0,598) \frac{-0,418 \pm 1,224 \delta + 0,128 \delta^2}{1 + \delta^2}, \quad A_4 = (-1,069) \frac{(-0,305 \delta^2)}{1 + \delta^2}$$

(6)  $(I_L \xrightarrow{\delta'} 2 \longrightarrow 0)$

$$F_2 = A_2'(I_L, \delta', 2) \cdot (-0,598), \quad A_4 = A_4'(I_L, \delta', 2) \cdot (-1,069)$$

(7)  $(I_L' \xrightarrow{\delta'} 2 \xrightarrow{\delta} 2)$

$$A_2 = A_2'(I_L, \delta', 2) \frac{-0,418 \pm 1,224 \delta + 0,128 \delta^2}{1 + \delta^2}, \quad A_4 = A_4'(I_L, \delta', 2) \frac{(-0,305 \delta^2)}{1 + \delta^2}.$$

Diese Beziehungen werden durch folgende Werte erfüllt:

$$\begin{aligned} 2^+ \xrightarrow{(874 \text{ KeV})} 2^+ \xrightarrow{(123 \text{ KeV})} 0^+ \quad & A_2 = -0,012 \pm 12 \quad A_4 = 0,324 \\ 2^- \xrightarrow{(724 \text{ KeV})} 2^+ \xrightarrow{(997 \text{ KeV})} 0^+ \quad & A_2 = 0,251 \pm 10 \quad A_4 = 0,021 \pm \frac{25}{22} \\ 2^- \xrightarrow{(724 \text{ KeV})} 2^+ \xrightarrow{(874 \text{ KeV})} 2^+ \quad & A_2 = -0,094 \pm 11 \quad A_4 = 0,006 \pm \frac{6}{7} \end{aligned}$$

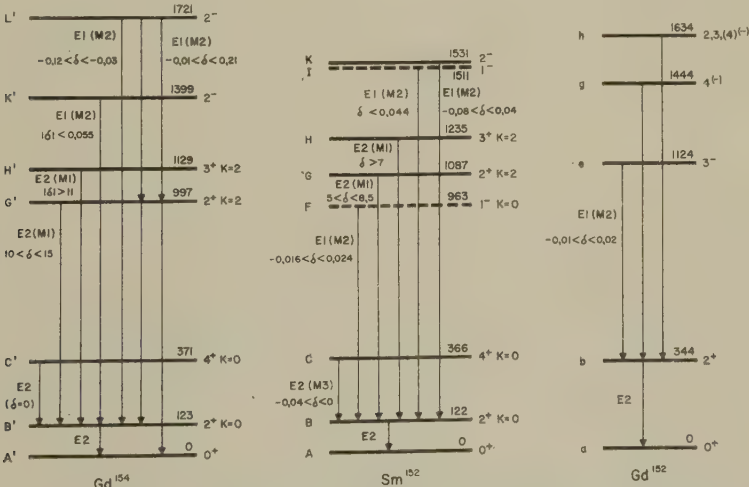


Fig. 8

Resultate der Richtungskorrelationsmessungen (vgl. Fig. 1, Tab. 5 und 6)

Für das Mischungsverhältnis der ersten Kaskade (874 KeV–123 KeV) findet man  $10 < \delta < 15$ , für dasjenige der zweiten Kaskade (724 KeV–997 KeV)  $|\delta'| < 0,05$ . Alle diese Werte liegen innerhalb der in Tabelle 6 angegebenen Fehlergrenzen.

#### IV. Messung des $g$ -Faktors des $^{152}\text{Sm}$

Der  $g$ -Faktor des ersten  $2^+$ -Rotationsniveaus des  $^{152}\text{Sm}$  ist 1958 von SUGIMOTO<sup>34)</sup> sowie von GOLDRING und SCHARENBERG<sup>17)</sup> gemessen worden. SUGIMOTO gibt an, dass sein Resultat  $g_{\text{eff}} = 0,36 \pm 0,16$  wegen des inneren Feldes um 10% reduziert werden muss, während GOLDRING und SCHARENBERG aus dem experimentell gefundenen Wert  $g_{\text{eff}} = 0,368 \pm 0,026$  den wahren Wert  $g_N = 0,21 \pm 0,04$  erhalten, da das innere Feld nach ihren Berechnungen 70% des äusseren Feldes ausmacht. Wir haben nun versucht, den wahren  $g$ -Faktor bzw. das innere Feld durch Messungen bei verschiedenen Temperaturen experimentell zu bestimmen.

##### A. Theorie

Der  $g$ -Faktor des mittleren Niveaus einer Kaskade lässt sich im Prinzip aus der Verschiebung  $\Delta\varphi(t) = \omega_L \cdot t$  der ungestörten Winkelverteilung  $W^0(\Theta)$  in einem Magnetfeld  $H$  senkrecht zur Ebene der  $\gamma$ -Quanten bestimmen:

$$W(\Theta, t, H) = W^0(\Theta + \omega_L t) \quad (5)$$

$$\omega_L = g_N \mu_N H / \hbar \quad (6)$$

$\omega_L$  ist die Larmorfrequenz des Kernels,  $\mu_N$  das Kernmagneton.

Wenn die Koinzidenzauflösungszeit  $2\tau_R$  viel grösser ist als die Lebensdauer  $\tau_N$  des Kernels,  $2\tau_R \gg \tau_N$ , wie das in unseren Experimenten der Fall war, so misst man die integrale Winkelverteilung

$$W(\Theta, H) = \int_0^\infty W^0(\Theta + \omega_L t) \exp(-t/\tau_N) dt / \tau_N = W(\Theta, \omega_L \tau_N).$$

Beim  $^{152}\text{Sm}$  ist zu berücksichtigen, dass

1. in der flüssigen Quelle ausser der Wechselwirkung des Kernels mit dem angelegten Magnetfeld noch eine magnetische Hyperfeinwechselwirkung vorhanden ist, die sich infolge der kurzen Spinrelaxationszeit  $\tau_S < 10^{-13}$  sec zu einem Zusatzfeld  $H_{\text{int}}$  am Ort des Kernels ausmittelt,

2. in den Oxydquellen ausserdem eine statische Quadrupolwechselwirkung ( $\omega_0 \approx 2 \cdot 10^8 \text{ sec}^{-1}$ ) vorhanden ist.

1. *Hyperfeinwechselwirkung:* Unter der Voraussetzung, dass die Spinrelaxationszeit  $\tau_S$  viel kleiner ist als die Lebensdauer  $\tau_N$  des Kernels, besteht nach GOLDRING und SCHARENBERG<sup>17)</sup> die Wirkung der  $A(\mathbf{I}) \cdot \mathbf{J}$



Kopplung im äusseren Feld einzig darin, dass der Kern im Mittel ein zusätzliches Feld  $H_{\text{int}}$  erfährt:

$$H_{\text{int}} = H_{\text{ext}} \frac{A\chi_0}{N g_E \mu_B g_N \mu_N} \quad (7)$$

$$H_{\text{ext}} + H_{\text{int}} = H_{\text{eff}}, \quad \omega_L = g_N \mu_N H_{\text{eff}} / \hbar = g_{\text{eff}} \mu_N H_{\text{ext}} / \hbar. \quad (8a, b)$$

Dabei bedeutet  $\chi_0$  die atomare Suszeptibilität,  $A$  die Hyperfeinstrukturkonstante,  $N$  die Zahl der Atome pro Volumeneinheit,  $g_E$  den  $g$ -Faktor der Elektronen und  $\mu_B$  das Bohrsche Magneton.

Falls die Winkelverteilung ohne Magnetfeld durch eine zeitabhängige Hyperfeinwechselwirkung gestört ist, wobei der Schwächungskoeffizient gegeben ist durch  $G_k(t) = \exp(-\lambda_k t)$  (vgl. (3)), so erhält man für die Winkelverteilung im Magnetfeld

$$W(\Theta, H) = \sum_{k=0,2,\dots} A_k \int_0^{\infty} G_k(t) P_k(\Theta + \omega_L t) \exp(-t/\tau_N) dt / \tau_N \quad (9)$$

Dies ist leicht einzusehen, wenn man den Kern in einem Koordinatensystem betrachtet, das mit der Frequenz  $\omega_L$  um die  $H$ -Achse rotiert, wobei  $\omega_L$  durch (8b) gegeben ist. In diesem rotierten Koordinatensystem hat das schnell veränderliche Feld, das auf den Kern wirkt, keine Vorzugsrichtung, da der Mittelwert des Feldes durch die Rotation wegtransformiert ist. Die Störung im rotierten System ist also gleich wie die Störung ohne äusseres Magnetfeld, solange  $\omega_L \tau_S \ll 1$ .

Sofern das Gesetz von Curie  $\chi_0 T = \text{const.}$  gilt, ist das innere Feld nach (7) der absoluten Temperatur umgekehrt proportional. Daraus ergibt sich die Möglichkeit, durch Erhöhung der Temperatur das innere Feld beliebig klein zu machen. Ausserdem kann man durch die Messung des effektiven  $g$ -Faktors  $g_{\text{eff}} = g_N H_{\text{eff}} / H_{\text{ext}}$  bei verschiedenen Temperaturen das innere Feld experimentell bestimmen.

Obschon das innere Feld im  $^{152}\text{Sm}$  relativ gross ist ( $H_{\text{int}} = (0,7 \pm 0,2) \cdot H_{\text{ext}}^{17})$ , erwartet man, dass in unseren Messungen bei  $300^\circ\text{K}$  und bei  $1200^\circ\text{K}$   $g_{\text{eff}}$  praktisch konstant bleibt, da sich die Suszeptibilität des  $\text{Sm}^{3+}$  in diesem Temperaturbereich wenig ändert<sup>35)</sup>. Experimentell findet man aber, dass sich  $g_{\text{eff}}$  um einen Faktor  $2,2 \pm 0,7$  ändert.

2. *Quadrupolwechselwirkung.* Aus den experimentell gefundenen Schwächungskoeffizienten  $G_2$  der polykristallinen Quellen (siehe III. C) ergibt sich unter der Voraussetzung, dass die  $A(\mathbf{I} \cdot \mathbf{J})$ -Kopplung wie in der flüssigen Quelle keine Störung verursacht, nach (4):

$$300^\circ\text{K} \quad G_2 = 0,676 \pm 0,075 \quad \omega_0 = (1,7 \pm 0,4) \cdot 10^8 \text{ sec}^{-1}$$

$$1200^\circ\text{K} \quad G_2 = 0,550 \pm 0,070 \quad \omega_0 = (2,7 \pm 1,0) \cdot 10^8 \text{ sec}^{-1}.$$

Nimmt man für die Messung bei Zimmertemperatur einen effektiven  $g$ -Faktor  $g_{\text{eff}} = 0,38$  an, so findet man für  $H = 22$  KG

$$\omega_L = 4,0 \cdot 10^7 \text{ sec}^{-1}.$$

Die elektrische und die magnetische Wechselwirkung sind also von gleicher Grössenordnung, und man erhält deshalb für die Winkelverteilung sehr komplizierte Ausdrücke (vgl. ref. <sup>30</sup>), eqs. 15, 16). Da es uns in erster Linie um den Vergleich der Messungen bei  $300^\circ \text{ K}$  und  $1200^\circ \text{ K}$  geht, haben wir uns damit begnügt, folgende Grösse zu berechnen:

$$W(\Theta, \omega_0, H) = \int_0^\infty W^0(\Theta + \omega_L t) G(\omega_0 t) \exp(-t/\tau_N) dt / \tau_N = 1 + A_2 G_2 \left\{ P_2(\Theta) + \Delta\varphi \frac{dP_2}{d\Theta} \right\} \quad (10)$$

$$G_0 = 1, G_2(\omega_0 t) = \frac{1}{35} (13 + 2 \cos(\omega_0 t) + 12 \cos(3\omega_0 t) + 8 \cos(4\omega_0 t)). \quad (11)$$

Dabei wurde  $A_4 = 0$  gesetzt, da die gemessene Kaskade 1409 KeV–122 KeV einen vernachlässigbar kleinen  $A_4$ -Term besitzt.  $G(\omega_0 t)$  ist der zeitabhängige Schwächungskoeffizient für Quadrupolwechselwirkung in polykristalliner Quelle (vgl. (4)).

Mit  $H = 22$  KG und  $\tau_N = 2,02$  nsec fanden wir folgende Werte:

$\omega_0$ (sec <sup>-1</sup> )	$g_{\text{eff}}$	$G_2$	$100 \Delta\varphi$ (rad)	$H g_{\text{eff}} / \Delta\varphi$ (KG/rad)
$1,7 \cdot 10^8$	0,38	0,67	4,63	180
$1,7 \cdot 10^8$	0,18	0,68	2,21	180
$2,7 \cdot 10^8$	0,18	0,55	2,26	175

## B. Experimente

1. *Flüssige Quelle.* Da die untersuchte Kaskade 1409 KeV–122 KeV in flüssiger Quelle ungestört ist, und da der  $A_4$ -Term verschwindet, erhält man aus (9):

$$W(\Theta, H) = 1 + \frac{A_2}{4} + \frac{3}{4} A_2 \frac{\cos 2 \Theta - 2 \omega_L \tau_N \sin 2 \Theta}{1 + (2 \omega_L \tau_N)^2}. \quad (13)$$

Wir haben die Koinzidenzrate  $KR(\Theta)$  unter den Winkeln  $\Theta = 135^\circ$ ,  $180^\circ$ ,  $225^\circ$  und  $270^\circ$  mit abwechselungsweise positivem und negativem Magnetstrom gemessen und haben daraus die Messgrösse  $\eta^\pm$  gebildet:

$$\eta^\pm = \frac{KR^-(225^\circ) - KR^\pm(135^\circ)}{KR^\pm(180^\circ) - KR^\pm(270^\circ)} = \frac{W^\pm(225^\circ) - W^\pm(135^\circ)}{W^\pm(180^\circ) - W^\pm(270^\circ)} = \mp 2 \omega_L \tau_N. \quad (14)$$

Die Elektronik war die gleiche wie die unter II. A beschriebene. Wir haben Lichtleiter aus Plexiglas von 40 cm Länge verwendet und haben

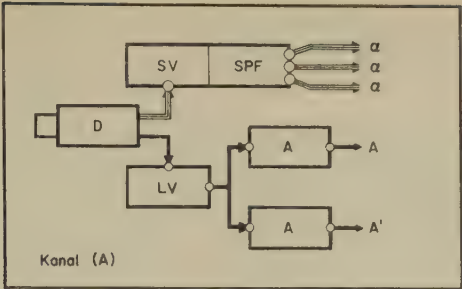
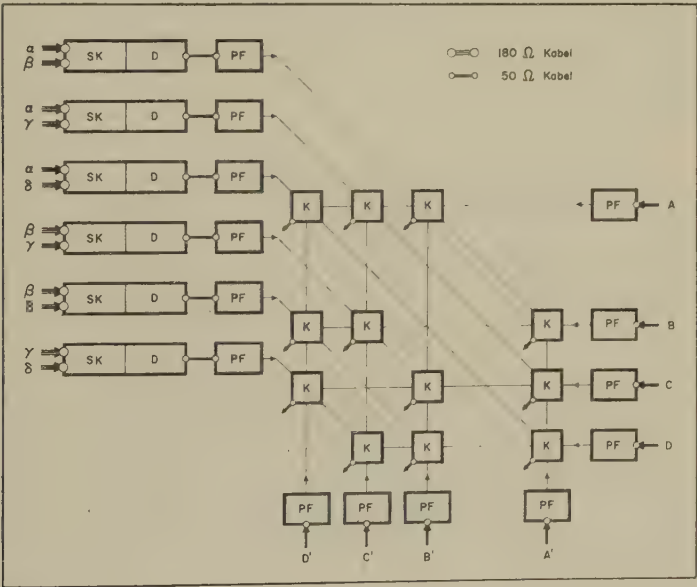


Fig. 9

Elektronik der 4-Kanalapparatur

a. Blockschema eines der 4 Kanäle (A), (B), (C) und (D)

D = Detektor (EMI 6097 F, +2000 Volt); SV = Schneller Verstärker (Anfangsverstärkung 400, Sättigung bei 20 mVolt); SPF = Pulsformer (+1-Volt-Impulse von 30 nsec Dauer auf 3 180-Ohm-Ausgänge); LV = Linearverstärker (NE 5202); A = Einkanalanalysatoren (NE 5102 bzw. NE 5103)



b. Blockschema der Koinzidenzanordnung

SK = Schnelle Koinzidenz (50 nsec Auflösungszeit); D = Delay (variabel von 0,5  $\mu$ sec bis 2  $\mu$ sec); PF = Pulsformer (+20-Volt-Impulse von 0,2  $\mu$ sec Dauer); K = Tripelkoinzidenz (0,3  $\mu$ sec Auflösungszeit)

die Photomultiplier EMI 6097B mit 2 mm Permalloy magnetisch abgeschirmt. Ein Einfluss des Magnetfeldes auf die Stosszahlen war nicht festzustellen. Die Anordnung der Detektoren und der Quelle im Magnet

war praktisch gleich wie bei der in Figur 10 dargestellten Anordnung für die Messungen am Oxyd. Das Magnetfeld von  $(19,0 \pm 0,2)$  KG wurde durch eine Stromstabilisierung auf  $\pm 1\%$  konstant gehalten. Nach jedem Winkelzyklus

$$135^\circ, 225^\circ, 270^\circ, 225^\circ, 180^\circ, 135^\circ$$

wurde automatisch entmagnetisiert und der Magnetstrom umgepolt.

Die Messung lieferte das Resultat

$$|\bar{\eta}| = 0,126 \pm 0,014 \quad g_{\text{eff}} = 0,35 \pm 0,07.$$

Im Fehler des  $g$ -Faktors ist die Unsicherheit der Lebensdauermessung  $\tau_N = (2,02 \pm 0,15) \text{ nsec}^{11})$  berücksichtigt.

2. *Oxydquelle*. Für die Messungen an der polykristallinen Oxydquelle haben wir eine neu konstruierte Apparatur mit 4 Detektoren verwendet\*). Mit dieser können gleichzeitig 12 Koinzidenzen registriert werden (siehe Blockschema Fig. 9).

Die Dimensionen des Magnets und die Anordnung der Quelle und der Detektoren sind in Figur 10 dargestellt. Dank der Lichtleiter von 60 cm

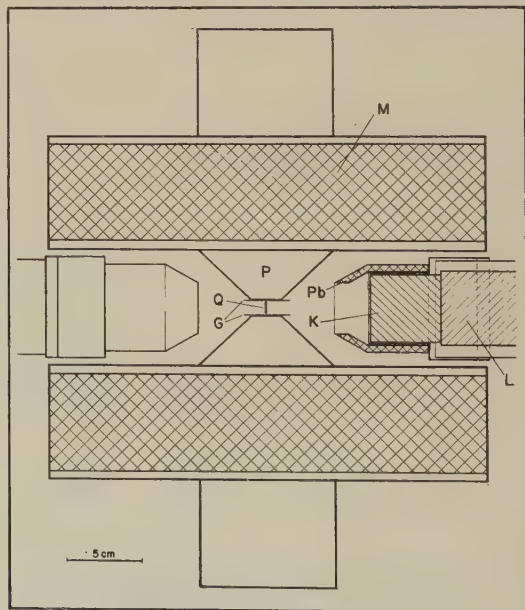


Fig. 10

Experimentelle Anordnung bei der Messung des  $g$ -Faktors.

Q = Quelle; P = Polschuh; M = Magnetspule; G = Glimmerscheiben;  
K = Kristall; Pb = Bleiabschirmung; L = Lichtleiter

†, \*) Für die Konstruktion dieser Apparatur sind wir Herrn V. PICCAND zu grossem Dank verpflichtet.

Länge und der magnetischen Abschirmung der Photomultiplier durch zwei Permalloyrohre von je 3 mm Dicke war kein Einfluss des Magnetfeldes auf die Zählrate festzustellen. Nach jeder Messreihe von zwei Tagen wurde der Magnetstrom umgepolt.

Das aktive  $\text{Eu}_2\text{O}_3$  war in einem Quarzröhrchen von 6 mm Länge eingeschmolzen. Bei der ersten Messung wurde das Präparat durch ein Gasflämmchen auf helle Rotglut erhitzt ( $1200 \pm 100$ )°K. Auf den Polschuhen waren zum Schutz vor den Flammgasen dünne Glimmerscheiben von 30 mm Durchmesser befestigt. Für die zweite Messung (Zimmertemperatur) wurde die Gasflamme ausgelöscht, während im übrigen die Anordnung unverändert blieb. Unter diesen Umständen hat man Gewähr dafür, dass der Unterschied der Messergebnisse nur von der Temperatur abhängt.

Der Abstand der Kristalle ( $1\frac{1}{2}'' \times 1\frac{1}{2}''$ ) von der Quelle betrug 71 mm. Durch konische Bleiabsorber von 5 mm Dicke (siehe Fig. 10) wurden die Kristalle gegen Streustrahlung abgeschirmt.

Die 4 Detektoren (A), (B), (C) und (D) sind auf einem Winkeltisch montiert und können um die  $H$ -Achse gedreht werden. Wir haben folgende Anordnung gewählt: Die Detektoren (A) und (B) sind bei 0° bzw. 45° fest montiert, die andern zwei sind unter einem Winkel von 45° fest miteinander verbunden und bewegen sich gemeinsam in 9 Schritten von 135° bis 255° (Detektor C) bzw. von 180° bis 300° (Detektor D).

Da jeder der 4 Detektoren mit zwei Einkanalanalysatoren verbunden ist (siehe Fig. 9), von denen der eine auf die 1409 KeV-Linie, der andere auf die 122 KeV-Linie eingestellt ist, erhält man für jedes Detektorpaar, z. B. (A) und (D), gleichzeitig Koinzidenzen  $A(1409 \text{ KeV})-D'(122 \text{ KeV}) \sim W(\theta)$  und  $D(1409 \text{ KeV})-A'(122 \text{ KeV}) \sim W(360^\circ - \theta)$ . Von den 12 möglichen Koinzidenzen sind nur 8 von Bedeutung, da der Winkel zwischen (A) und (B) bzw. zwischen (C) und (D) festgehalten wird.

Streng genommen muss man die Winkelverschiebung  $\Delta\varphi(H)$  für jede der 8 Koinzidenzraten separat bestimmen, da die Wahrscheinlichkeit für den Nachweis einer wahren Koinzidenz nicht für alle Kombinationen (A) (D'), (D) (A'), ... gleich ist, und da die Winkel zwischen den Detektorpaaren (A) (B) und (C) (D) nicht exakt 45° betragen. Um die Rechenarbeit zu verkleinern, haben wir jedoch für jede Messreihe Mittelwerte über alle wahren Koinzidenzraten entsprechender Winkel  $\theta$  und  $\theta + 180^\circ$  gebildet. Diese gemittelten  $\overline{KR}_w$  haben wir dargestellt durch die Funktion

$$\overline{KR}_w(\theta, H) = \overline{KR}_w(\theta + \Delta\varphi) = a_0 + a_2 P_2(\theta + \Delta\varphi) + a_4 P_4(\theta + \Delta\varphi)$$

und haben dann durch Ausgleichsrechnung die 4 Parameter

$$a_0 = a_0^0 + \delta a_0, a_2 = a_2^0 + \delta a_2, a_4 = 0 + \delta a_4, \Delta\varphi = \Delta\varphi^0 + \delta(\Delta\varphi)$$



bestimmt. Da  $\Delta\varphi$  klein ist gegenüber 1, besteht zwischen  $\Delta\varphi$  und  $H$  ein linearer Zusammenhang:

$$\Delta\varphi = \Delta\varphi(H=0) + \alpha H$$

Das Resultat ist in Figur 11 dargestellt. Um zu prüfen, ob die Mittelwertbildung zulässig war, haben wir nachträglich mit Hilfe des  $\chi^2$ -Tests kontrolliert, ob die  $KR_w$  durch die berechnete Verteilung richtig wieder-

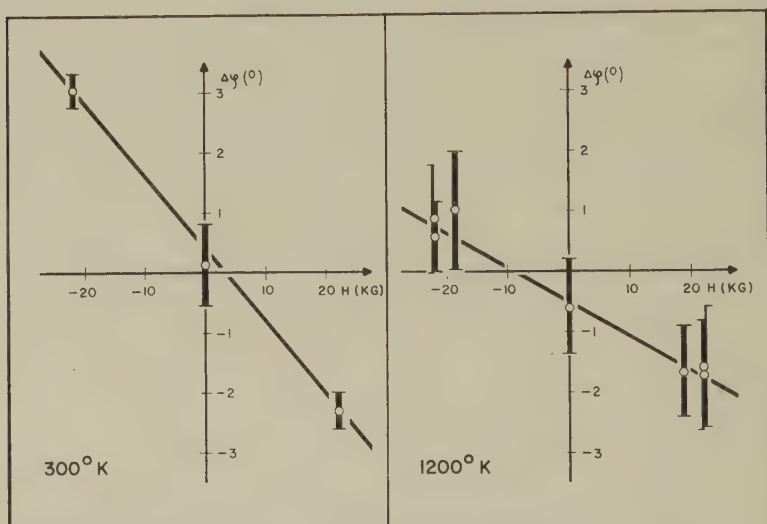


Fig. 11

Verschiebung  $\Delta\varphi$  der Winkelverteilung  $W(\Theta, H) = W(\Theta + \Delta\varphi)$  im Magnetfeld  $H$  bei 300° K und 1200° K ( $^{152}\text{Eu}$ , Oxydquelle)

gegeben werden. Es zeigte sich, dass dies bei der ersten Messung (1200° K) stets der Fall war, bei der zweiten (300° K) jedoch nur dann, wenn wir alle Koinzidenzen mit dem Kanal (A), der offensichtlich apparative Schwankungen zeigte, wegliessen. Die Tatsache, dass wir bei den beiden Messungen nicht die gleichen, mit gewissen Fehlern behafteten Winkelpositionen verwendet haben, äussert sich darin, dass die Winkelverschiebung für  $H = 0$  nicht bei beiden Messungen gleich ist.

Der  $A_4$ -Term hätte weggelassen werden können, da er im Mittel 30mal kleiner war als der  $A_2$ -Term.

Die Messungen ergaben:

$$\text{Oxyd } 300^\circ \text{ K} \quad \alpha = -(2,12 \pm 0,175) \cdot 10^{-3} \text{ rad/KG}$$

$$\text{Oxyd } 1200^\circ \text{ K} \quad \alpha = -(1,00 \pm 0,29) \cdot 10^{-3} \text{ rad/KG.}$$

Vergleicht man diese Werte mit (10), (11) und (12), so findet man mit  $H g_{\text{eff}} / \Delta\varphi = 180 \text{ KG/rad}$

$$\text{Oxyd } 300^\circ \text{ K} \quad g_{\text{eff}} = 0,382 \pm 0,032$$

$$\text{Oxyd } 1200^\circ \text{ K} \quad g_{\text{eff}} = 0,180 \pm 0,052.$$

Dabei geht man von der Voraussetzung aus, dass die statische Quadrupolwechselwirkung (4) allein für die im Oxyd beobachtete Störung der Richtungskorrelation verantwortlich ist. Wenn man die entgegengesetzte Annahme macht, dass die Störung von der zeitabhängigen magnetischen Hyperfeinwechselwirkung nach (3) herrührt, wobei man im Oxyd eine 1000mal grössere Spinrelaxationszeit  $\tau_s \approx 1,5 \cdot 10^{-11} \text{ sec}$  erhält als in der flüssigen Quelle, so gilt nach (9) für  $\Delta\varphi \ll 1$ :

$$\Delta\varphi = \omega_L \tau_N G_2,$$

und man findet

$$\text{Oxyd } 300^\circ \text{ K} \quad g_{\text{eff}} = 0,325 \pm 0,045$$

$$\text{Oxyd } 1200^\circ \text{ K} \quad g_{\text{eff}} = 0,188 \pm 0,060.$$

Wir glauben, dass die Annahme einer reinen Quadrupolwechselwirkung der Wirklichkeit näher kommt.

### C. Diskussion

Die Messungen bei Zimmertemperatur geben sowohl bei der flüssigen als auch bei der polykristallinen Quelle den gleichen effektiven  $g$ -Faktor, dessen Wert mit den Resultaten anderer Autoren übereinstimmt:

GOLDRING und SCHARENBERG <sup>17)</sup>	$g_{\text{eff}} = 0,368 \pm 0,06$	(Flüssige Target)
Eigene Messungen	$g_{\text{eff}} = 0,35 \pm 0,07$	(Flüssige Quelle)
SUGIMOTO <sup>34)</sup>	$g_{\text{eff}} = 0,36 \pm 0,16$	(Oxydtarget)
Eigene Messungen	$g_{\text{eff}} = 0,382 \pm 0,06$	(Oxydquelle).

Die Messung bei  $1200^\circ \text{ K}$  liefert jedoch einen halb so grossen Wert:

$$\text{Oxydquelle } 1200^\circ \text{ K} \quad g_{\text{eff}} = 0,180 \pm 0,065.$$

Die gefundene Temperaturabhängigkeit ist nicht verträglich mit dem aus (7) und (8) folgenden Ausdruck  $g_{\text{eff}} = g_N(1 + \text{const } \chi_0)$ , wenn man für  $\chi_0$  die makroskopisch gemessene Suszeptibilität des  $\text{Sm}^{3+}$ -Ions im Grundzustand einsetzt<sup>35)</sup>:

$T (^\circ \text{ K})$	300	400	600	1200
$\chi_0 \cdot 10^3$	1,3	0,8	1,0	1,4

Wahrscheinlich liegt der Grund für dieses Verhalten darin, dass sich die Elektronenhülle nach dem  $K$ -Einfang während einer Zeit, die mit der Lebensdauer  $\tau_N = 2,0$  nsec des  $2^+$ -Niveaus vergleichbar ist, in einem angeregten Zustand befindet, dessen Suszeptibilität und Hyperfeinstrukturkonstante von derjenigen des Grundzustandes verschieden und zeitlich nicht konstant sind. LEHMANN und MILLER<sup>36)</sup> haben durch Delayexperimente an der  $\gamma$ - $\gamma$ -Kaskade 170 KeV–250 KeV des  $\text{Cd}^{111}$  gezeigt, dass in nichtleitenden Substanzen nach dem  $K$ -Einfang während einer Zeit von der Grössenordnung 10 nsec eine starke nicht stationäre Störung existiert, die in metallischen Quellen nicht vorhanden ist, und die offenbar davon herrührt, dass die Löcher in der äusseren Elektronenschale, die durch Auger-Prozesse nach dem  $K$ -Einfang entstehen, in einem Isolator nicht rasch genug aufgefüllt werden. Über das resultierende innere Feld, bzw. über dessen zeitlichen Mittelwert  $\overline{H_{\text{int}}}$ , weiss man nichts Genaues. Man wird jedoch vermuten, dass das Feld grösser ist als im Grundzustand, und dass es wie in anderen seltenen Erden, bei denen das Gesetz von Curie  $\chi_0 T = \text{const.}$  gilt, der Temperatur umgekehrt proportional ist. Dass sich der Hüllenspin  $J$  im Temperaturgleichgewicht mit

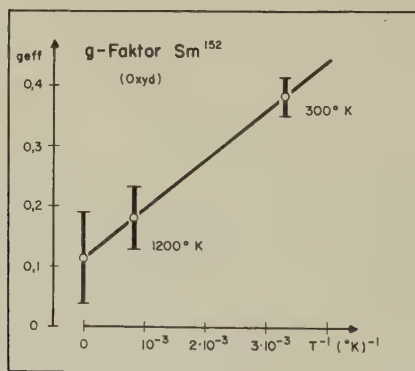


Fig. 12

Effektiver  $g$ -Faktor  $g_{\text{eff}}$  in Funktion von  $T^{-1}$

Der bei  $T = \infty$  eingezeichnete Wert ist nach (15) aus den Messwerten bei 300° K und 1200° K berechnet

der Umgebung befindet, wird durch die Kürze der Spinrelaxationszeit  $\tau_S < 10^{-13}$  sec gewährleistet. Unter der Annahme  $TH_{\text{int}}/H_{\text{ext}} = \text{const} = k$  findet man (siehe Fig. 12)

$$g_{\text{eff}} = g_N (1 + k/T). \quad (15)$$

$g_N = 0,115 \pm 0,075$	$k = (715 \pm 520)^\circ\text{K}$	$H_{\text{int}}(300^\circ\text{K}) = (2,4 \pm 1,7)H_{\text{ext}}$
-------------------------	-----------------------------------	---

Die vorausgesetzte Temperaturabhängigkeit (15) lässt sich mit nur zwei Messpunkten nicht beweisen, die Messung bei 1200° K liefert jedoch eine obere Grenze für  $g_N$

$$g_N \leq g_{\text{eff}}(1200^\circ \text{K}) = 0,180 \pm 0,065.$$

Die Resultate von GOLDRING und SCHARENBERG<sup>17)</sup>  $g_N = 0,21 \pm 0,04$  sind mit beiden Werten verträglich.

Wir möchten an dieser Stelle Herrn Prof. Dr. P. SCHERRER unsere Dankbarkeit ausdrücken für seine Anteilnahme und seine stetige Unterstützung. Zu Dank verpflichtet sind wir auch den Herren J. BERTHIER und J. W. SUNIER für ihre Mithilfe bei den Experimenten.

### Literatur

- 1) L. GRODZINS, Bull. Am. Phys. Soc. 7, 163 (1956). – H. KENDALL und L. GRODZINS, Bull. Am. Phys. Soc. 7, 164 (1956). – L. GRODZINS, Phys. Rev. 109, 1014 (1958).
- 2) O. NATHAN und M. A. WAGGONER, Nucl. Phys. 2, 548 (1956/57).
- 3) J. O. JULIANO und F. S. STEPHENS, Phys. Rev. 108, 341 (1957).
- 4) J. M. CORK, M. K. BRICE, R. G. HELMER und D. E. SARASON, Phys. Rev. 107, 1621 (1957).
- 5) B. V. BOBYKIN und K. M. NOVIK, Bull. Acad. Sciences USSR Physical Series 21, 1546 (1957).
- 6) B. S. DZHELEPOV und N. N. ZHUKOVSKY, Nucl. Phys. 6, 655 (1958).
- 7) M. GOLDHABER, L. GRODZINS und A. W. SUNYAR, Phys. Rev. 109, 1015 (1958).
- 8) D. E. ALBURGER, S. OFER und M. GOLDHABER, Phys. Rev. 112, 1998 (1958).
- 9) I. MARKLUND, Nucl. Phys. 9, 83 (1958/59). – I. MARKLUND, O. NATHAN und O. B. NIELSEN, Nucl. Phys. 15, 199 (1960).
- 10) O. NATHAN und S. HULTBERG, Nucl. Phys. 10, 118 (1959).
- 11) A. W. SUNYAR, Phys. Rev. 98, 653 (1955).
- 12) M. ABRAHAM, R. KEDZIE und C. D. JEFFRIES, Phys. Rev. 108, 58 (1957).
- 13) V. W. COHEN, J. SCHWARTZ und R. NOVICK, Phys. Rev. Letters 2, 305 (1959).
- 14) S. OFER, Nucl. Phys. 4, 477 (1957).
- 15) G. T. WOOD und O. NATHAN, Comptes rendus du Congrès international de physique nucléaire, p. 861 (Paris 1959). – G. T. WOOD, Phys. Rev. 117, 1499 (1959).
- 16) R. W. LIDE und M. L. WIEDENBECK, Phys. Rev. 113, 840 (1959). – G. D. HICKMANN und M. L. WIEDENBECK, Bull. Am. Phys. Soc. 2, 395 (1957).
- 17) G. GOLDRING und R. P. SCHARENBERG, Phys. Rev. 110, 701 (1958).
- 18) B. MOTTELSON und S. G. NILSSON, Mat. Fys. Skr. Dan. Vid. Selsk. 7, Nr. 8 (1959).
- 19) K. ALDER, A. BOHR, T. HUUS, B. MOTTELSON und A. WINThER, Rev. Mod. Phys. 28, 432 (1956).
- 20) H. DE WAARD, Nucleonics 13, Nr. 7, 36 (1955).
- 21) F. GIMMI, E. HEER und P. SCHERRER, Helv. Phys. Acta 29, 147 (1956).
- 22) J. S. LAWSON und H. FRAUENFELDER, Phys. Rev. 91, 649 (1953).
- 23) A. W. SUNYAR, zitiert in L. GRODZINS und A. W. SUNYAR, Phys. Rev. Letters 2, 307 (1959).

- <sup>24)</sup> P. DEBRUNNER, E. HEER, W. KÜNDIG und R. RÜETSCHI, *Helv. Phys. Acta* **29**, 463 (1956).
- <sup>25)</sup> K. ALDER, *Helv. Phys. Acta* **26**, 761 (1956).
- <sup>26)</sup> A. H. COOKE und H. J. DUFFUS, *Proc. Roy. Soc.* **229**, 407 (1955).
- <sup>27)</sup> W. LOW, *Phys. Rev.* **103**, 1309 (1956).
- <sup>28)</sup> J. M. BAKER und B. BLEANEY, *Proc. Phys. Soc.* **68A**, 257 (1955).
- <sup>29)</sup> A. H. COOKE und J. G. PARK, *Proc. Phys. Soc.* **69A**, 282 (1956).
- <sup>30)</sup> A. ABRAGAM und R. V. POUND, *Phys. Rev.* **92**, 943 (1953).
- <sup>31)</sup> J. M. BAKER und B. BLEANEY, *Proc. Roy. Soc.* **245**, 156 (1958).
- <sup>32)</sup> S. A. ALTSCHULER und K. A. VALIEV, *JETP* **8**, 661 (1959).
- <sup>33)</sup> S. OFER, *Nucl. Phys.* **5**, 331 (1957).
- <sup>34)</sup> K. SUGIMOTO, *Journ. Phys. Soc. Jap.* **13**, 240 (1958).
- <sup>35)</sup> A. FRANK, *Phys. Rev.* **39**, 119 (1932).
- <sup>36)</sup> P. LEHMANN und J. MILLER, *J. de Phys. et le Radium* **17**, 526 (1956).



# The Reversal of the Spontaneous Polarization in Guanidine Aluminium Sulfate Hexahydrate

by **Ennio Fatuzzo**

Laboratories RCA Limited, Zurich, Switzerland

(21. IV. 1960)

*Abstract.* The switching in Guanidine Aluminium Sulfate Hexahydrate (GASH) was studied in particular at high electric fields. The samples were subjected to electrical and thermal treatment and their switching was studied under different conditions. As a result of these studies, it appears that at high fields the domain wall motion time is longer than the nucleation time and hence controls the switching process.

## 1. Introduction

Guanidine Aluminium Sulfate Hexahydrate (GASH) was reported to be ferroelectric by HOLDEN, MATTHIAS, MERZ, REMEIK<sup>1</sup>). Some of its properties were first investigated by these authors<sup>2</sup>) and later by WIEDER<sup>3</sup>) and by PRUTTON<sup>4</sup>). They found that the reciprocal switching time  $1/t_s$  depends at low fields exponentially on the applied field, like BaTiO<sub>3</sub><sup>5</sup>) and at higher fields linearly on  $E$ .

In this paper we shall describe some new experimental results on the switching in GASH. In particular, the linear high field part is discussed in detail because in this range GASH appears to behave differently from other ferroelectrics. FATUZZO and MERZ<sup>6</sup>) have worked out a model for Triglycine Sulfate (TGS) which can explain the switching properties in this material satisfactorily. One purpose of this paper is to show how this can be applied to GASH. Throughout the paper, the same symbols and definitions are used as in Ref. <sup>6</sup>).

## 2. Preparation of the Samples

GASH has a pronounced cleavage plane perpendicular to the ferroelectric axis which facilitates the preparation of thin plates. The samples were first cleaved into rather thin plates and then ground with abrasive powder and alcohol. The thickness of the samples was between 0.2 mm to 0.3 mm. Evaporated silver electrodes were used.

### 3. Experimental Results

Two kinds of samples, showing a somewhat different behavior can be found. In one of them, type I, the switching time  $t_s$  is comparatively long and the pulse is very asymmetrical up to very high fields. In the other one, type II,  $t_s$  is considerably shorter and the switching pulse is almost symmetrical for fields higher than 1 KV/cm; the «symmetry»<sup>6)</sup> which is defined as rise time  $t'$  over decay time  $t''$  being equal to one.

Most samples were found to be of type II and only a few were of type I. By ageing, samples of type I usually became of type II. Furthermore, type I behavior can only be observed when the waiting time  $T$  between a positive and a negative applied pulse is very long (5 msec or longer). When  $T$  is reduced to zero, every sample shows type II behavior.

3.1. *Type I Samples.* We have studied the dependence of the switching time  $t_s$  on the applied field  $E$ . In Figure 1 the  $1/t_s$  versus  $E$  curve is plotted for a «Type I» sample when the «waiting time  $T$ » between opposite pulses is long and when  $T$  is zero. In the first case ( $T$  long)  $t_s$  is one order of magnitude larger than in both the second case ( $T = 0$ ) and for crystals of type II. If the waiting time  $T$  is equal to zero,  $t_s$  has the same magnitude as in type II crystals and the switching pulse is symmetrical.

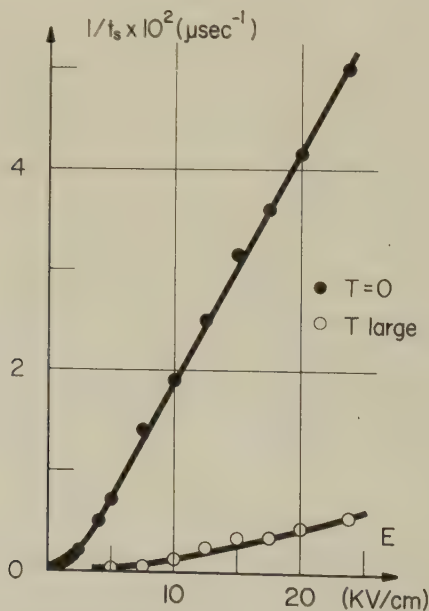


Fig. 1

$1/t_s$  is plotted versus the field  $E$  for a «type I» crystal, when the waiting time  $T$  between opposite pulses is large and when  $T = 0$

In Figure 2 the switching current  $i_s$  is plotted versus time  $t$  for the case that  $T$  is long. It can be seen that  $i_s$  decreases exponentially with  $t$ .

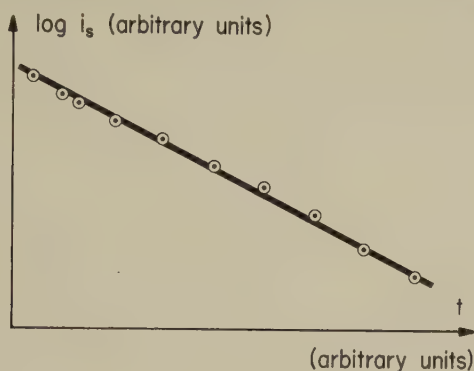


Fig. 2

The decreasing part of the asymmetrical switching pulse (obtained when  $T$  is large on type I crystals) is here plotted in semilog. scale. It follows from this graph that  $i_s$  can be fitted by an equation of the type:  $i_s = i_0 \exp(-t/b)$

In Figure 3 the "rise time"<sup>6)</sup>  $t'$  of the current pulse is plotted versus field  $E$  for the case that  $T$  is long:  $1/t'$  varies almost quadratically with  $E$ .

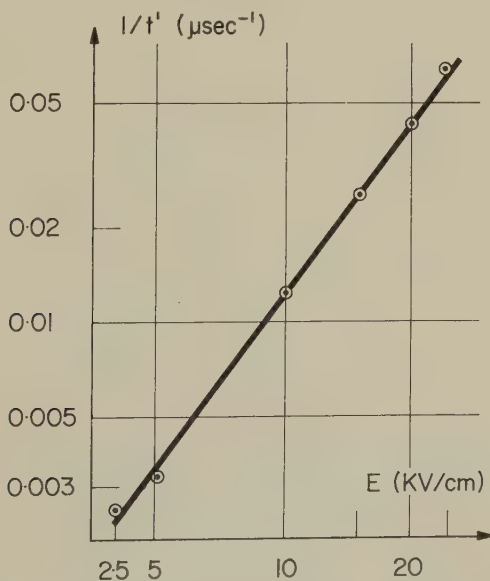


Fig. 3

The «rise time»  $t'$  of the pulse obtained when  $T$  is large on type I crystals is here plotted versus field  $E$ . It follows that:  $t' \propto 1/E^2$

3.2. *Type II Samples.* In Figure 4 the  $1/t_s$  versus  $E$  curve is plotted for a "type II" sample; one can notice a good linear part up to fields of 40 KV/cm. The shape of the switching pulse is symmetrical and independent of the waiting time  $T$ . The switching time  $t_s$  is found to be proportional to the square of the thickness  $d$ , when the applied voltage  $V$  is kept constant (Fig. 5).

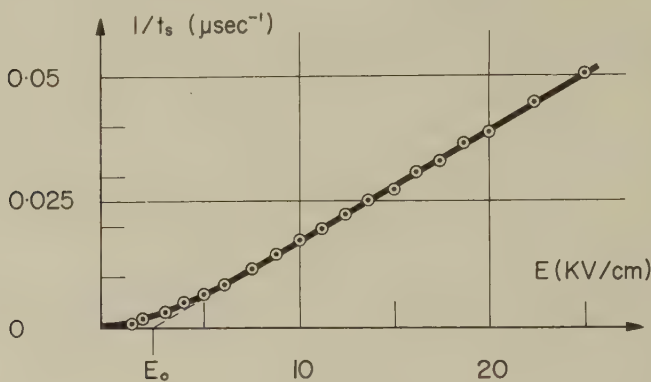


Fig. 4

$1/t_s$  versus the field  $E$  for type II crystals. It is apparent that  $1/t_s$  is linear with  $E$ .

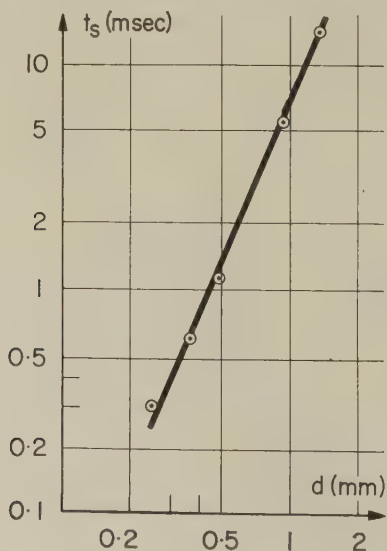


Fig. 5

By applying a constant voltage  $V$  on a crystal and varying its thickness  $d$ , one can plot  $t_s$  versus  $d$ . It appears here that:  $t_s \propto d^2$

Heating experiments have been performed, according to the technique described for TGS in Ref. <sup>6</sup>). In these experiments the crystal is heated from one side and the resulting changes in switching current are being investigated. In some ferroelectrics, e. g.  $\text{LiH}_3(\text{SeO}_3)_2$ , the switching time decreases very much within a few seconds upon heating. When the heater is removed, the switching time goes back to the initial value within a few seconds. On the other hand, in GASH, it takes several minutes to change the switching time  $t_s$  by just 10% or 20% under the same conditions of heating or cooling.

Experiments on switching in parts have been performed, similar to those made on TGS by FATUZZO and MERZ <sup>6</sup>). In these experiments pulses are applied which are too short to reverse the polarization completely. As in TGS <sup>6</sup>) it was found that there is a critical pulse length time  $t^* < t_s$  which still allows complete switching of the polarization if many of them are applied. If the pulse length time is smaller than  $t^*$  then it is impossible to reverse the polarization even if very many pulses are applied. In GASH it was found that this time  $t^*$  is very long, about half the switching time  $t_s$ .

The shape of the switching current pulses depends very much on the polarization state of the crystal. If the first applied pulse (positive pulse) is so short that not all the dipoles are switched, the second (negative) switching pulse is strongly modified. If we denote the "rise time" <sup>6</sup>) of

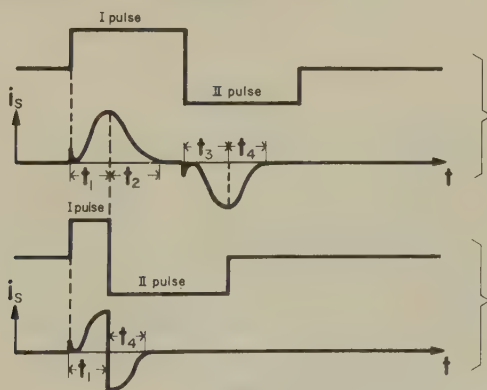


Fig. 6a

Two opposite pulses are applied to the crystal; the waiting time  $T$  is zero. The current  $i_s$  is plotted versus  $t$ . It should be noticed that the switching pulses are almost symmetrical.

Fig. 6b

The first applied pulse is made shorter, so that the last part of the charge does not have time to switch. Then the II switching pulse is deformed; the «rise time» becomes equal to zero. This indicates that the charge that switched last during the first pulse, switches first during the second pulse and viceversa.



the positive and negative pulses with  $t_1$  and  $t_3$  respectively and the "decay time" with  $t_2$  and  $t_4$ , the following is obtained from Figure 6. If the first applied pulse is so short that  $t_2$  is zero (Fig. 6b) it results that in the second switching pulse the rise time  $t_3$  is zero. The same is true for the first pulse if one reduces the length of the second applied pulse.

If the waiting time  $T$  between opposite pulses is made different from zero (Fig. 7), then part of the charge switches back due to the fact that some domains collapse upon removal of the field. The rise time of the second pulse becomes then zero.

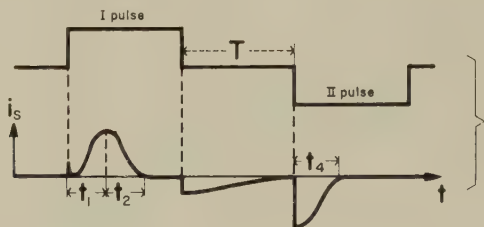


Fig. 7

A «waiting time»  $T$  is introduced between the opposite pulses. Part of the charge switched with the I pulse collapses back and the «rise time» of the II pulse becomes again zero. This indicates that the charge that collapses back during the waiting time is the charge that would have switched first in the II pulse and hence the charge that switched last in the I pulse

#### 4. Discussion

4.1. *Type I Samples.* In discussing the experimental results obtained for GASH, we have to refer to the model developed for TGS by FATUZZO and MERZ<sup>6)</sup>. Let us first consider the type I samples. From a comparison with the model<sup>6)</sup> it appears that "type I" crystals are crystals in which over the whole range of electric fields used the domain wall motion time  $t_d$ , which is the time to move a wall through the crystal, is much shorter than the nucleation time  $t_n$  which is the time to nucleate all domains, from the first to the last one. The following facts substantiate this situation: (I) the very asymmetrical switching pulse combined with the fact that  $1/t' \propto E^2$  (see Eq. (25) of Ref. 6) and (II) the fact that the "decay time" of the switching pulse follows an exponential law of the form

$$i_s = i_0 \exp(-t/b)$$

as shown in Figure 2 (see Eq. (23) of Ref. 6 when  $\tau_1 \ll \tau_2$ ).

It is not obvious why in the "type I" crystals the nucleation time is so abnormally long. However, assuming this, it is easy to explain why the pulse becomes so much shorter when the waiting time  $T$  is made

zero: in this case, the nucleation time is reduced so much that  $t_n$  becomes much smaller than  $t_d$ , which is in agreement with the observations in TGS<sup>7</sup>). In other words, when  $T = 0$ , also  $t_n/t_d$  becomes zero; all the nuclei are formed at the same time and grow together. The shape of the switching pulse is then due to the growth by domain wall motion. The field at which  $t'$  starts deviating from the square law should allow the calculation of the nucleus-domain interaction<sup>6</sup>). However, no such deviation is encountered in GASH (Fig. 3). Hence only a maximum limit for the domain-nucleus interaction in GASH can be given. The lowest value observed in GASH for the interaction is only  $m_0 = 0.02^6$ ), which is very small compared to other ferroelectrics.

4.2. *Type II Samples.* To fit the behavior of the type II samples with the model<sup>6</sup>) we have to assume that  $t_n \ll t_d$ . This is supported by the following experimental facts described in section 3.2: (I) the linearity of  $1/t_s$  versus applied fields  $E$  up to very high fields, (II) the heating experiment, (III), the "switching in parts" experiment and (IV) the proportionality between  $t_s$  and the square of the sample thickness (Eq. 6 of Ref. 6).

Let us now try to explain the experimental results represented in Figures 6a, 6b, 7. From Figure 7 it is apparent that some domains are collapsing back upon removal of the field, which indicates the presence of an electric bias. Since the hysteresis loop of this sample, however, does *not* appear to be biased we are brought to the assumption that some regions are biased in one direction and others in the opposite direction, so that normally they cancel each other. As soon as the pulse of one polarity is applied, the regions having the "right" polarization switch first. It is therefore expected that the regions which switch first upon application of a pulse of one polarity, switch last when a pulse of opposite polarity is applied. This could be verified as shown in Figure 6b.

If there is a waiting time  $T$  between the two pulses, it is expected that the biased regions which have switched *last* with the first pulse should collapse back when the field is removed. This is apparent from Figure 7; the charge that collapses back is the charge that switched last during the first pulse.

## 5. Conclusions

The switching in GASH can be described by the model developed in Reference 6) for TGS, with some additional assumptions.

It appears that the nucleus-domain interaction is very low, and that crystals which appear "unbiased" really consist of regions biased in opposite directions. These regions play a very important part in the switching.

At high fields we observed that the reciprocal switching time varies proportionally with  $(E - E_0)$ . We, furthermore, know that in this region

the switching is controlled by domain wall motion, as discussed above, from which follows that the wall velocity must vary proportionally to  $(E - E_0)$ .

In this respect GASH differs from TGS because in TGS the extrapolation of the high field part of the  $1/t_s$  curve passes through the origin<sup>6)</sup> whereas in GASH the extrapolation of the high field part cuts the  $E$  axis at  $E_0$ . It thus appears that GASH behaves similar to a ferromagnetic material where one also finds a critical field  $H_0$  (coercive field) below which there is no domain growth. However, WIEDER<sup>3)</sup> found that even below  $E_0$  switching still occurs in GASH and that in the low field region the switching time depends exponentially on the field like in all other ferroelectrics<sup>4)6)8)</sup>. No simple explanation can be given for this behavior and for the lack of an inflection point in the  $1/t_s$  versus  $E$  curve in GASH.

## 6. Acknowledgments

We wish to thank Dr. W. J. MERZ for many helpful discussions and suggestions, and Mr. H. ROETSCHI for his technical assistance.

## References

- 1) HOLDEN, MATTHIAS, MERZ and REMEIK, Phys. Rev. *98*, 546 (1955).
- 2) HOLDEN, MERZ, REMEIK, and MATTHIAS, Phys. Rev. *101*, 962 (1956).
- 3) WIEDER, Proc. Inst. Radio Engrs. *45*, 1094 (1957).
- 4) PRUTTON, Proc. Phys. Soc. (London) *B* *70*, 1064 (1957).
- 5) MERZ, Phys. Rev. *95*, 690 (1954).
- 6) FATUZZO and MERZ, Phys. Rev. *116*, 61 (1959).
- 7) FATUZZO, Helv. Phys. Acta *31*, 309 (1958).
- 8) MERZ, J. Appl. Phys. *27*, 938 (1956).

# Elektrische Leitfähigkeit und Halleffekt von Ge-Si-Legierungen

von G. Busch und O. Vogt

(Laboratorium für Festkörperphysik, ETH, Zürich)

*Summary.* The preparation of Ge-Si single-crystalline or coarsely polycrystalline alloys is extensively described. The composition of the samples is determined by measurements of densities and lattice constants. We have measured Hall-constants and electrical conductivities as functions of temperature between 20 and 900°C. Mobilities for electrons and holes and intrinsic carrier concentrations are calculated as functions of the alloy composition.

## I. Einleitung

Im Rahmen unserer Untersuchungen über die magnetischen Eigenschaften von Halbleitern entstand der Plan, an Ge-Si-Kristallen Messungen der magnetischen Suszeptibilität vorzunehmen. Um solche Messungen im Eigenleitungsgebiet auswerten zu können, ist die Kenntnis der Inversionsdichte  $n_i$  notwendig, wie dies BUSCH und MOOSER<sup>1)</sup> und BUSCH<sup>2)</sup> gezeigt haben. Unsere Messungen dienen deshalb hauptsächlich dazu, die Inversionsdichte direkt zu bestimmen.

Das System Ge-Si ist schon recht vielseitig untersucht worden, insbesondere von STÖHR und KLEMM<sup>3)</sup> das Zustandsdiagramm, von JOHNSON und CHRISTIAN<sup>4)</sup> die Gitterkonstanten, von BRAUNSTEIN, MOORE und HERMAN<sup>5)</sup> und JOHNSON und CHRISTIAN<sup>6)</sup> die optische Absorption, von JOFFE<sup>7)</sup> die Wärmeleitfähigkeit, von LEVITAS<sup>8)</sup> und GLICKSMAN<sup>9)</sup> die elektrische Leitfähigkeit und der Halleffekt, von DRESSELHAUS, KIP und KITTEL<sup>10)</sup> die Zyklotronresonanz, von GLICKSMAN<sup>11)</sup> die magnetische Widerstandsänderung. Dazu existieren auch noch theoretische Arbeiten von HERMAN<sup>13)</sup> und PARMENTER<sup>14)</sup> über die Energiebänderstruktur.

Dennoch wäre es unzweckmässig, auf Grund dieser Daten die Inversionsdichte  $n_i$  aus der Formel

$$n_i = 2 \left( \frac{2 \pi k T}{h^2} \right)^{3/2} (m_n \cdot m_p)^{3/4} e^{-\frac{\Delta E}{2kT}}$$

zu bestimmen, da die Breite der verbotenen Zone als Funktion der Temperatur im Bereiche von 1000°K nicht exakt bekannt ist. Ebensovienig kennen wir die effektiven Massen. Zudem ist die Formel nur für ein

Zweibandmodell gültig, gerade aber für Ge-Si-Mischkristalle müsste man eher mit einem Dreibandmodell rechnen.

Ein weiterer bedeutender Fehler würde auch davon herrühren, dass man die Zusammensetzung der Proben nicht beliebig genau bestimmen kann, die Breite der verbotenen Zone z. B. jedoch kritisch von ihr abhängt. Alle diese Schwierigkeiten haben wir umgangen, indem wir an jeder einzelnen Probe neben der Suszeptibilität auch Halleffekt und elektrische Leitfähigkeit gemessen und aus den zwei letzteren die Inversionsdichte direkt bestimmt haben.

## II. Die Proben

### a) Herstellung

1. *Ge, Si, Ausgangsmaterialien.* Die Rohmaterialien waren *n*-Typ Ge in Barren mit einem minimalen spezifischen Widerstand von  $50 \Omega \text{ cm}$  und *p*-Typ Si in Brocken mit spezifischen Widerständen von  $20\text{--}100 \Omega \text{ cm}$ . Si- und Ge-Einkristalle wurden in einem Standardofen nach der Czochralski-Methode gezogen. Das Vakuum war besser als  $5 \times 10^{-4} \text{ mm Hg}$ . Die becherförmigen Tiegel bestanden aus Quarz, eng umgeben von einem Graphitzylinder. Der Zylinder wurde durch eine Hochfrequenzspule geheizt. Die Messung der Temperatur erfolgte mit einem Pyrometer, welches durch einen Lichtleiter aus Quarz mit dem Tiegelboden verbunden war.

2. *Proben von 0–50 At % Si.* Solche Proben wurden nach dem «zone levelling»-Verfahren (von PFANN<sup>15</sup>) ausführlich beschrieben) hergestellt. Geheizt wurde durch direkte Ankoppelung an eine Hochfrequenzspule (500 kHz), wobei die relativ niedrige Frequenz ein Vorwärmen der Probe mit Hilfe eines Graphitringes, welcher der Spule genähert wurde, notwendig machte. Die Schiffchen mit den Proben befanden sich in einem Quarzrohr von 25 mm Durchmesser, durch welches Schutzgas (gereinigtes Argon oder Wasserstoff) strömte. Die Schiffchen selbst bestanden aus relativ dickwandigem Quarzglas und waren auf der Innenseite mit Carborund Nr. 600 fein sandgestrahlt. Sie wurden in Flußsäure kurz gereinigt und dann über einer Kerze bekohlt (dieser weiche und lockere Niederschlag hat sich besser bewährt als eine pyrolytisch abgeschiedene Kohleschicht). Bekohlte Schiffchen sind brauchbar für Konzentrationen von 0–5 At % Si. Für höhere Si-Konzentrationen wurden die Schiffchen mit Siliziumcarbid, Zirkonoxyd oder Berylliumoxyd überzogen. Der SiC-Überzug entstand, indem man auf pyrolytisch bekohlte Schiffchen feinstes Si-Pulver aufspritzte und bei Weissglut zur Reaktion brachte.  $\text{ZrO}_2$  und  $\text{BeO}$  wurden in der Kugelmühle zu feinem Pulver gemahlen, in Collodium suspendiert und direkt aufgespritzt. Das Collodium wurde nach-



her in einem Ofen bei  $1000^{\circ}\text{C}$  verbrannt. Schiffchen mit  $\text{ZrO}_2$  resp. mit  $\text{BeO}$ -Belag werden zwar noch weniger benetzt als  $\text{SiC}$ -Schiffchen, aber leider waren die zur Verfügung stehenden Oxydpulver nicht rein genug, um Proben mit spezifischen Widerständen grösser als  $1\ \Omega\text{ cm}$  herzustellen. Wir haben deshalb hauptsächlich Schiffchen mit  $\text{SiC}$ -Belag verwendet. Um Einkristalle zu erhalten, wurde die Probe an einen Keim angeschmolzen, dessen Zusammensetzung nicht mehr als 1% von derjenigen der gewünschten Probe differiert. Praktisch heisst das, dass man, bei Ge beginnend, in 1%-Schritten zu Si-reicheren Proben überging.

Figur 1 stellt schematisch das zone-levelling-Verfahren dar, unter Benutzung des Zustandsdiagrammes des Systems Si-Ge, letzteres aus der Arbeit von STÖHR und KLEMM<sup>3)</sup> entnommen.

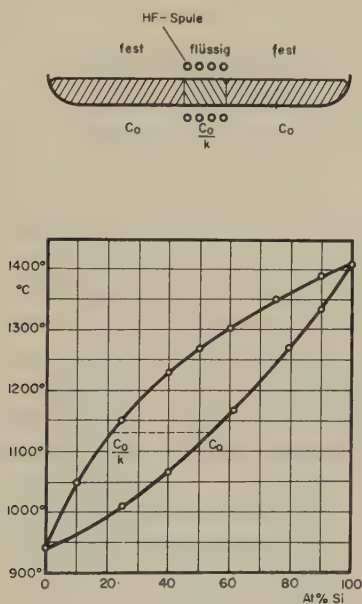


Fig. 1  
Zustandsdiagramm und zone-levelling-Verfahren

Falls  $C_0$  die gewünschte Konzentration ist, muss die flüssige Zone die Konzentration  $C_0/k$  ( $k$  = Verteilungskoeffizient) aufweisen, was man schon bei der Einwäge und Befrachtung des Schiffchens einigermaßen zu erreichen sucht und was sich nach etwa 10 Zonendurchgängen automatisch einstellt. Die Zone darf nur langsam (2–3 mm pro Stunde) wandern, um eine genügende Durchmischung der Schmelze zu ermöglichen.

Bis zu Konzentrationen von ca. 10 At% Si entstanden Einkristalle oder wenigstens Zwillingkristalle. Die gesamte eingewogene Substanzmenge

verteilt sich im Schiffchen auf ca. 15 cm Länge. Aus ihr wurde im Mittelstück die Probe von 4 cm Länge herausgeschnitten.

3. *Proben von 50–100 At% Si.* Für Proben von mehr als 50 At% Si existieren keine befriedigenden Tiegelmaterialien mehr. Wir haben deshalb eine neue tiegelfreie Methode, das Anblasverfahren, entwickelt. Im Prinzip ist es eine Variation des Verneuil-Prozesses: Pulver, in der gewünschten Konzentration Ge-Si gemischt, wird in eine senkrecht hängende flüssige Kuppe des entstehenden Kristalles eingeblasen, dort aufgeschmolzen und kristallisiert, indem man den Kristall unter Drehung um die eigene Achse langsam aus der Heizzone herauszieht.

Um eine gute Homogenität der entstehenden Kristalle zu erreichen, bläst man, analog dem zone-levelling-Verfahren, in den Si-reichen Kristall zunächst reines Ge, denn die flüssige Zone muss ja immer etwa 3 mal mehr Ge enthalten als der erstarrende Kristall (Siehe Zustandsdiagramm Fig. 1).

Figur 2 zeigt halbschematisch unsere Apparatur. Das untere Ende des Keimes wird in einer Hochfrequenzspule flüssig gehalten. Das Pulver-

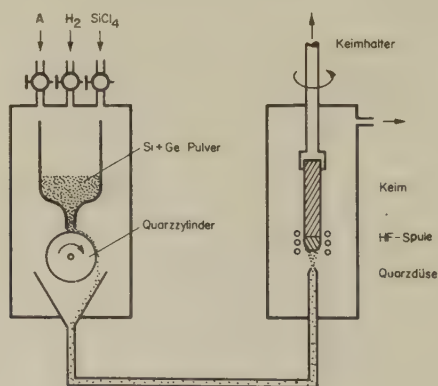


Fig. 2  
Anblasapparatur

gemisch wird durch eine Quarzdüse von 1,5 mm Durchmesser gegen den flüssigen Tropfen geblasen. Wichtig ist dabei, das Zuführungsrohr lang (150 mm) zu gestalten, um einen laminaren Gasfluss zu erreichen. Spule und Keim sind in einem grossen Pyrexzylinder eingeschlossen. Alle Durchführungen bestehen aus Teflon. Der Keim ist am oberen Ende negativ konisch geschliffen. Der Konus sitzt in einem Gegenkonus aus Quarz. Dadurch ist der Keim isoliert eingespannt. Es ist wichtig, den Kristall isoliert zu halten, um Durchschläge von der Hochfrequenzspule gegen Erde zu verhindern. Als Trägergas wird ein Gemisch von Argon

und ca. 10% Wasserstoff verwendet bei einer Durchflussmenge von 1 l pro Minute. Wasserstoff wird beigemischt, um elektrische Durchschläge zu verhüten (quenching). Es ist nicht möglich, mit reinem Wasserstoff allein Kristalle nach diesem Verfahren herzustellen, da die Wärmeleitfähigkeit des Wasserstoffes zu gross ist. Beide Gase werden sorgfältig gereinigt. In einigen Fällen trat trotzdem, wahrscheinlich infolge Absorption von Sauerstoff und Wasser an der Pulveroberfläche, auf der flüssigen Kuppe eine schwimmende Oxydhaut auf, welche die Aufnahme weiteren Pulvers verhinderte. Wir haben diese Schwierigkeit umgangen, indem wir dem Gasstrom ganz wenig  $\text{SiCl}_4$ -Dampf beimischten. Die entstehenden Chloride sind viel leichter flüchtig als die Oxyde. Auf diese Weise haben wir erreichen können, dass mehr als 95% des angeblasenen Pulvers auch tatsächlich eingeschmolzen wurden. Das Pulver selbst befindet sich in einem Quarzglaszylinder mit einem engen (ca. 3 mm) unten offenen Stutzen. Durch einen Vibrator am Zylinder wird der ständige Pulvernachschub gesichert. In einem Abstand von ca.  $\frac{1}{2}$  mm vom Ausgang des Stutzens entfernt versperrt eine Walze aus Quarzglas dem Pulver den Weg. Dieses füllt zwar den Zwischenraum zwischen Stutzen und Quarzwalze, rutscht aber nicht hinaus. Erst eine langsame Drehbewegung der Walze schleppt in kontrollierbarer Weise Pulver mit, welches in einen Trichter fällt und dort vom Gasstrom mitgerissen wird. Alle Bestandteile der Apparatur, die mit dem Pulver in Berührung kommen, sind aus Quarzglas gearbeitet, um jegliche Verunreinigung, insbesondere mit Bor, zu verhindern.

Das Pulver selbst wird in einem oberflächen-gehärteten Stahlmörser (Härte 64) durch Zertrümmern der Ausgangssubstanzen hergestellt. Wir waren natürlich im Hinblick auf Verunreinigungen gegenüber dieser Methode zuerst sehr skeptisch eingestellt. Zur Kontrolle wurde ein  $60\Omega\text{cm}$  Si-Einkristall im Mörser zu Pulver verarbeitet, welches dann gegen einen Si-Keim angeblasen wurde. Durch einmaliges Durchschmelzen nach dem «floating-zone»-Verfahren wurde der entstandene Stab zu einem Einkristall gemacht. Sein mittlerer spezifischer Widerstand war  $50\Omega\text{cm}$ , also war überhaupt keine elektrisch wirksame Verunreinigung dazu gekommen. Magnetische Messungen am Pulver zeigten, dass auch keine Spuren einer ferromagnetischen Komponente vorhanden waren.

Wir haben versucht, Si-Pulver in einer Kugelmühle aus reinem Aluminiumoxyd nass oder trocken zu mahlen, doch entsteht dabei immer ein Abrieb von Aluminiumoxyd, der im Polarisationsmikroskop sofort sichtbar wird, da Aluminiumoxyd im Unterschied zu Si doppelbrechend ist. Durch Auszählen der Pulverkörner sieht man, dass das Endprodukt bis zu 0,1% Aluminiumoxyd enthält und damit unbrauchbar wird. Für den Anblasprozess sind nur Körner mit einem Durchmesser von 0,01–0,15 mm

zu gebrauchen, welche mit Stoffsieben ausgesiebt werden. Feinere Körner (Flugstaub) dringen nicht in die Schmelze ein, gröbere Körner werden nicht vollständig aufgeschmolzen. Nach dem Aussieben wird das Pulver während 3 Stunden bei 800°C ausgeheizt, um jegliche Wasserreste zu entfernen. In einem Quarzgefäß werden Ge- und Si-Pulver in der gewünschten Zusammensetzung während einer halben Stunde gründlich vermischt.

Von grösstem Interesse ist für uns die Homogenität der entstehenden Kristalle. Sie kann überprüft werden durch Messungen der magnetischen Suszeptibilität und der elektrischen Leitfähigkeit. Wir haben Stäbe erhalten, deren spezifischer elektrischer Widerstand auf der ganzen Länge nur um 10% variierte. Eine dritte Möglichkeit der Homogenitätskontrolle ist die Bestimmung der Gitterkonstanten nach DEBYE-SCHERRER an verschiedenen Punkten des Stabes. Wir haben Abweichungen von höchstens  $\frac{1}{2}$  At% Si vom Sollwert festgestellt. Um eine so weitgehende Homogenität zu erreichen, muss der entstehende Stab mit 30 Umdrehungen pro Minute rotieren, damit sicher Rotationssymmetrie eintritt. Die Wachstumsgeschwindigkeit der Kristalle war in unserem Fall 2–3 cm pro Stunde. Damit die Stäbe auf der ganzen Länge gleich dick bleiben, muss darauf geachtet werden, dass die Tangente an den flüssigen Tropfen beim Übergang genau senkrecht ist. Nur wenn dies erreicht werden kann, stellen sich automatisch in der festen und flüssigen Zone analog dem «zonelevelling»-Verfahren die richtigen Konzentrationsverhältnisse ein. Man kann zeigen, dass dies bei gleichbleibendem Querschnitt exponentiell schnell geschieht, mit dem Exponenten  $M/kG$ ,  $M$  = total angeblasene Pulvermenge,  $G$  = Gewicht des Tropfens,  $k$  = Verteilungskoeffizient. Das Problem, homogene Kristalle zu züchten, ist damit darauf zurückgeführt, Zuggeschwindigkeit, Pulvernachschub, Durchströmmenge der Gase und Generatorleistung so aufeinander abzustimmen, dass der Querschnitt des entstehenden Stabes möglichst immer gleich gross bleibt. Dies wird wesentlich durch die Tatsache erleichtert, dass die Parameter nicht unabhängig voneinander sind. Die Zuggeschwindigkeit kann nicht grösser gewählt werden als 3 cm pro h; das Pulver wird sonst nicht einwandfrei eingeschmolzen. Wir halten sie deshalb prinzipiell konstant. Dadurch ist unmittelbar auch der nötige Pulvernachschub bestimmt. Diese zwei Grössen sind leicht aufeinander abzustimmen, da sie in weiten Grenzen nicht von der Generatorleistung abhängen. Auch die Gasdurchflussmenge und die Zusammensetzung des Gases werden unter ständiger Kontrolle (Durchflussmeter) konstant gehalten. Somit bleibt nur noch übrig, die Generatorleistung (die dann allein die stabile Dicke des Stabes bestimmt) konstant zu halten. Da die Ankoppelung sehr schlecht ist, kann man in guter Näherung einfach den Blindstrom der Spule konstant halten. Wir

haben deshalb an die Hochfrequenzzuführung einen Hochfrequenztransformator gelegt, dessen Sekundärstrom in einem Thermokreuz Th 5 gleichgerichtet wird. Die entstehende Thermospannung wird mit Kompensator und Galvanometer gemessen. Der eigentliche Regler wird von diesem Galvanometer gesteuert. Abbildung 3 zeigt halbschematisch die Regelvorrichtung.

Die Lichtmarke des Galvanometers fällt gleichzeitig auf zwei differenziell geschaltete Fotozellen. Abweichungen vom Sollwert werden in einer

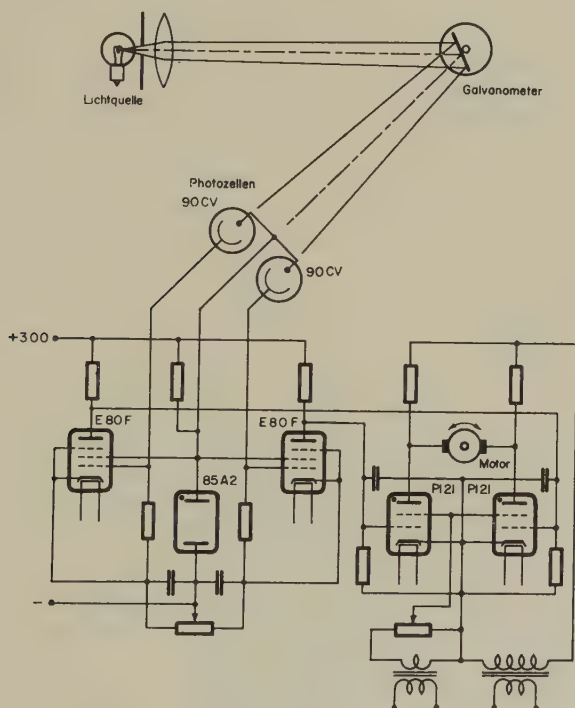


Fig 3  
Regler

zweistufigen Brückenschaltung verstärkt und steuern einen Servomotor, der seinerseits die Ankoppelung des Generators durch Bewegen einer Tauchspule mechanisch nachregelt. Diese einfache Art der Regelung hat sehr zufriedenstellend funktioniert.

Wir haben Stäbe von ca. 15 cm Länge hergestellt und aus ihnen wiederum das Mittelstück von 4 cm Länge als Probe herausgeschnitten. Die Stäbe waren zwar nicht einkristallin, aber doch sehr grobkristallin (100 bis 500 Kristallite pro  $\text{cm}^3$ ). Kristalle mit weniger als 50 At % Si liessen



sich mit unserer Apparatur nicht mehr herstellen, da der flüssige Tropfen zu reich war an schwerem Ge und deshalb abbriss.

4. *Proben von 80–100 At% Si.* Solche Proben wurden angeblasen wie soeben beschrieben, dann aber zusätzlich noch im Vakuum einem «float-ing-zone-levelling»-Prozess unterworfen. Unsere Appatur gleicht den üblichen Vorrichtungen, nur befindet sich unsere gekühlte Hochfrequenzspule ebenfalls im Hochvakuumssystem (Vakuum  $10^{-5}$  mm Hg). Wir hoffen, dadurch Verunreinigungen der Probe, wie sie durch das sonst übliche heiße Quarzrohr zwischen Spule und Kristall entstehen könnten, zu vermeiden. Die Zone wandert mit einer Geschwindigkeit von 1 mm pro Minute auf- und abwärts. Sowohl der aufschmelzende als auch der erstarrende Teil des Stabes werden gegenläufig gedreht (30 Umdrehungen pro Minute). Da die Frequenz von 500 kHz relativ niedrig ist, stellt sich die Zone nicht von selbst stabil ein; vielmehr muss die Generatorleistung mit der oben beschriebenen Regeleinrichtung konstant gehalten werden. Wir erhielten auf diese Weise zwar viel gröber kristalline und sogar stückweise einkristalline Proben. Dies geht aber leider auf Kosten der Homogenität, welche nur noch auf  $\pm 2\%$  erhalten blieb. Aus der flüssigen Zone, die, wie ein Blick auf das Zustandsdiagramm (Fig. 1) zeigt, stark überhitzt ist, verdampft in unkontrollierbarer Weise Ge.

#### b) *Bestimmung der Zusammensetzung*

1. *Dichtebestimmung.* Die Proben wurden auf folgende Masse zugeschlif-fen: Länge 38 mm, Querschnitt quadratisch, Seitenlänge 3,6 mm. Anschliessend wurden sie in  $\text{CP}_4$ <sup>16)</sup> leicht geätzt, während mehreren Stunden in KCN-Lösung gelegt und in deionisiertem Wasser gewaschen. Tempern der Proben war nicht notwendig, da sie ja schon während der Herstellung keine brüsken zeitlichen Temperaturänderungen erfuhren. Wir haben denn auch bei keiner Messung thermische Hysterese beobachten können. Die Dichte wurde mittels eines Quarzpyknometers gemessen, welches genau auf die Probengrösse angefertigt wurde. Um relativ komplizierte Korrekturen (reduzierte Wägung, Dichte des Wassers) zu umgehen, wurden vor und nach jeder Meßserie Ge und Si ausgemessen und prozentuale Korrekturen ermittelt. Bei einer Temperatur von 19°C betrug die Korrektur z. B.  $3,4\text{‰}$ . Damit wird die Genauigkeit der Dichtebestimmung  $\pm 0,3\text{‰}$ , was für unsere Zwecke vollauf genügt. Aus der Dichte werden nach JOHNSON und CHRISTIAN<sup>4)</sup> die At% Si direkt abgelesen, was um so eher einwandfrei geschehen kann, als ja der Zusammenhang zwischen Dichte und At% Si nahezu linear ist. Die Gitterkonstanten wurden nach DEBYE-SCHERRER in einer 114-mm-Kamera bestimmt. Dabei wurde dem zu untersuchenden Pulver 20% reines Si- resp. reines Ge-Pulver zugemischt, und ausgewertet wurden für verschiedene Linien  $\text{Cu K}_\alpha$  die

Differenzen zwischen unbekannter und Standardlinie. Dank dieses Verfahrens werden Fehler durch Verzerrung des Filmes weitgehend kompensiert. Die Linien einiger Kristalle zeigten eine ungewohnte Intensitätsverteilung. Eine Analyse ergibt aber, dass es sich um die Überlagerung zweier Gauss-Verteilungen handelt (die Reflexe von  $K_{\alpha 1}$  und  $K_{\alpha 2}$ ).

Gauss-Kurven weisen darauf hin, dass die Kristalle nicht vollständig homogen sind. Aus der Gaussverteilung errechnet man, dass die maximale Schwankung  $\frac{1}{4} \text{ At\%}$  beträgt. Aus der Gitterkonstante bestimmt sich wiederum nach JOHNSON und CHRISTIAN<sup>4)</sup> die Si-Konzentration der Proben.

Die endgültige Zusammensetzung unserer Kristalle bestimmte sich als Mittel der beiden jeweils erhaltenen Werte (Dichte und Gitterkonstante). Figur 4 zeigt den Zusammenhang zwischen Dichte und Gitterkonstante.

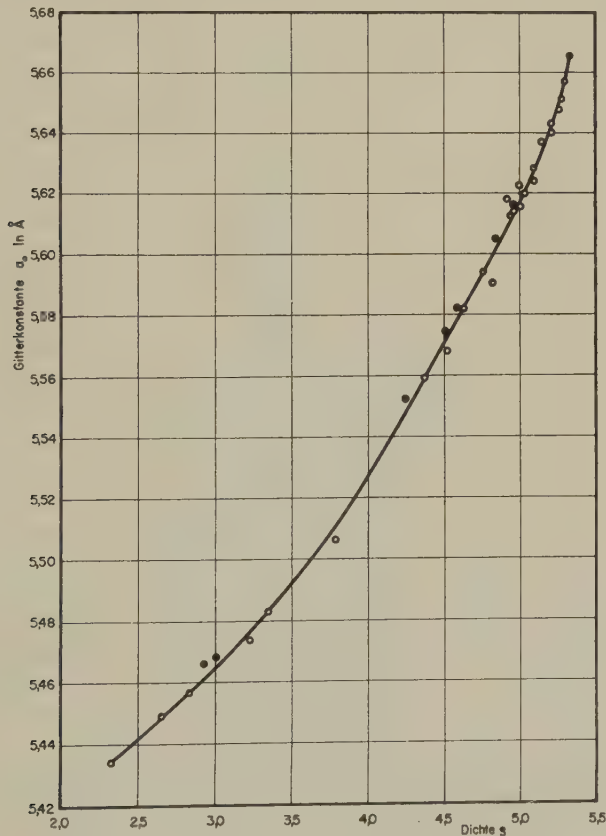


Fig. 4  
Gitterkonstante  $a_0$  als Funktion der Dichte

Abweichungen von der Sollkurve sind dabei als Inhomogenität der Probe und nicht als Messfehler zu interpretieren, denn unsere Messgenauigkeit ist besser als die Streuung der Punkte in Figur 4.

2. *Charakterisierung der Proben.* In der nachfolgenden Tabelle sind von den 34 Proben, die wir ausgemessen haben, die wichtigsten Daten zusam-

At % Si	Kristallite 0,1 cm <sup>3</sup>	Typ	$N_A - N_D$ $\times 10^{15}/\text{cm}^3$	Gitter- konst. in Å	Dichte
0	1	<i>n</i>	0,8	5,6570	5,326
1,0	1	<i>p</i>	1,2	5,6568	5,296
2,0	2	<i>p</i>	0,25	5,6510	5,286
3,1	60	<i>p</i>	0,5	5,6475	5,258
5,1	1	<i>p</i>	1,3	5,6430	5,203
5,5	80	<i>p</i>	0,3	5,6400	5,212
7,5	1	<i>p</i>	0,4	5,6367	5,146
10,2	90	<i>p</i>	0,5	5,6283	5,094
10,5	1	<i>n</i>	7,5	5,6241	5,097
12,8	2	<i>p</i>	1,8	5,6229	5,065
13,4	1000	<i>p</i>	0,8	5,6155	5,009
13,5	7	<i>p</i>	0,3	5,6197	5,027
14,9	5	<i>p</i>	0,6	5,6153	4,956
15,2	800	<i>p</i>	1,0	5,6179	4,908
15,3	1	<i>p</i>	0,3	5,6147	4,959
16,1	60	<i>p</i>	0,8	5,6146	4,914
16,5	2	<i>p</i>	1,8	5,6125	4,932
19	2	<i>p</i>	1,2	5,6054	4,839
21,7	800	<i>p</i>	2,8	5,5941	4,763
22	60	<i>p</i>	1,3	5,5905	4,723
27,5	2	<i>p</i>	0,7	5,5821	4,629
28,5	4	<i>p</i>	0,2	5,5804	4,582
31	500	<i>p</i>	0,7	5,5749	4,503
32,5	80	<i>p</i>	1,1	5,5679	4,520
36	2000	<i>p</i>	0,5	5,5595	4,388
41	300	<i>p</i>	3,1	5,5527	4,247
57	120	<i>p</i>	1,6	5,5063	3,791
72	40	<i>p</i>	4,6	5,4829	3,348
75	300	<i>p</i>	7,3	5,4739	3,230
80	400	<i>p</i>	3,1	5,4683	3,020
82	250	<i>n</i>	3,0	5,4660	2,935
86,5	50	<i>n</i>	2,0	5,4567	2,832
91	20	<i>n</i>	2,1	5,4492	2,655
100	1	<i>p</i>	1,0	5,4340	2,329

mengestellt. Die dabei auftretende Zahl der ionisierten Störstellen  $N_A - N_D$  wurde aus der Grösse des Halleffektes bei Zimmertemperatur errechnet. Sie ist, wenigstens was die Grössenordnung betrifft, ein gutes Mass für die Zahl der Fremdatome im Kristall. Die Zahl der Kristallite ist deshalb

pro  $0,1 \text{ cm}^3$  angegeben, weil Halleffekt und Leitfähigkeit an einem Stück der Probe gemessen wurden, das ungefähr  $0,1 \text{ cm}^3$  gross war. In den folgenden Kapiteln wird jede Probe mit der Angabe der At % Si bezeichnet.

### III. Elektrische Messungen

Die Messungen elektrischer Leitfähigkeit und des Halleffektes dienen in erster Linie dazu, die Inversionsdichte  $n_i$  zu bestimmen. Nur so weit unumgänglich notwendig wird auf das komplexe Problem der Beweglichkeiten eingegangen.

#### a) Messmethoden

Die Proben wurden in einen Halter aus Quarzglas eingespannt, und Stromzuführungen und Sonden aus Wolfram dienten zur Leitfähigkeits- und, nach der Fünfpunkt-Methode, zur Halleffektmessung.

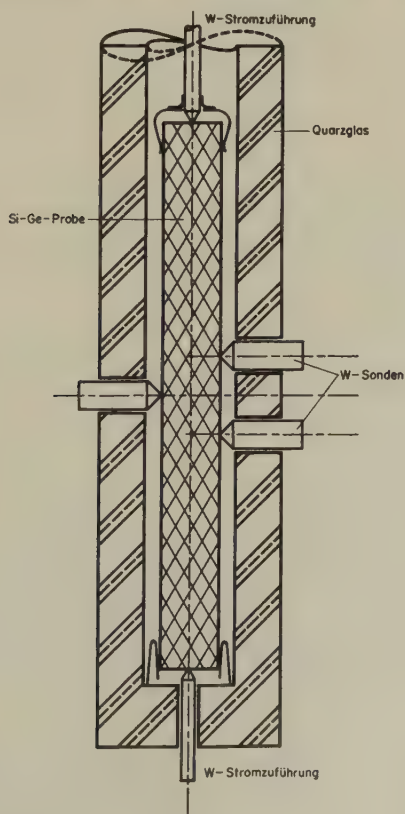


Fig. 5  
Probenhalter

Figur 5 zeigt einen Schnitt durch den wichtigsten Teil des Probenhalters. Er ist umgeben von einem evakuierten ( $10^{-3}$  mm Hg) Quarzzylinder, der seinerseits in einem speziellen Röhrenofen geheizt werden kann. Die Sonden wurden durch vorgespannte Wolframdrähte mit einer Kraft von 150 g gegen die Probe gedrückt. Temperaturen wurden mit einem Pt-10%-PtRh Thermoelement gemessen. Der Abstand zwischen den zwei Leitfähigkeitssonden beträgt 4,62 mm.

Die Leitfähigkeiten wurden mit der Wechselstromapparat von MÜLLER und WIELAND<sup>17)</sup> gemessen, der Halleffekt dagegen mit einem Gleichstromkompensator, weil hohe Übergangswiderstände die Wechselstrommessung verfälschten. Das Magnetfeld betrug 1000 Oersted.

### b) Theoretische Grundlagen

Wir beschränken uns auf Formeln für Zweibandleitung und Nichtentartung. Bei allen unseren Proben sind die Elektronenkonzentrationen klein genug, dass bei höheren Temperaturen keine Entartung einsetzt. Für die Eigenleitfähigkeit  $\sigma_i$  gilt

$$\sigma_i = en_i (b_n + b_p) \quad n_i = 2 \left( \frac{2\pi k T}{h^2} \right)^{3/2} (m_n \cdot m_p)^{3/4} e^{-\frac{\Delta E}{2kT}}$$

$e$  = Elektronenladung

$b_n$  = Elektronenbeweglichkeit

$b_p$  = Löcherbeweglichkeit

$m_0$  = Ruhemasse des Elektrons

$k$  = Boltzmannsche Konstante

$h$  = Planck'sches Wirkungsquantum

$m_{n,p}$  = effektive Massen

$\Delta E$  = Breite der verbotenen Zone

$n_i$  = Inversionsdichte

(Vgl. etwa BUSCH und WINKLER<sup>18)</sup>).

Aus  $\sigma_i$  kann bei Kenntnis der Beweglichkeiten sofort  $n_i$  bestimmt werden. Den Koeffizienten  $\alpha$  der Formel  $b_{n,p} = a_{lh} T^{-\alpha}$  ( $a_{lh}$  = Konstante der thermischen Streuung) nehmen wir für  $n$  und  $p$  Leiter an mit  $\alpha = 3/2$  ( $T^{-3/2}$ -Gesetz), (vgl. aber die Ergebnisse von LEVITAS<sup>8)</sup>). Unsere Annahme ist demzufolge nicht exakt richtig, doch wäre erstens die Bestimmung von  $\alpha$  aus Leitfähigkeits- und Halleffektmessungen problematisch und zweitens deutet der doch recht lineare Verlauf der  $\log \sigma_i$ -Kurven auf ein  $T^{-3/2}$ -Gesetz hin. Recht komplizierte Formeln müssen wir für den Halleffekt verwenden, da, wie sich herausstellen wird, bei unseren Proben das Beweglichkeitsverhältnis  $b$  fast genau 1 wird. Allgemein gilt für den Halleffekt im Zweibandmodell

$n$  = Elektronenkonzentration

$$R = \left( \frac{\bar{\tau}^2}{\bar{\tau}^2} \right) \frac{nb_n^2 - pb_p^2}{e(nb_n + pb_p)^2}$$

$p$  = Löcherkonzentration

Der Faktor  $\bar{\tau}^2/\bar{\tau}^2$  muss konsequenterweise mit  $3\pi/8$  angenommen werden (thermische Streuung). Allerdings stimmt dies nur für kugelförmige



Energieflächen exakt. Für ellipsoidähnliche Energieflächen haben ABELES und MEIBOOM<sup>19)</sup> den Streufaktor ausgerechnet. Die notwendige Modifikation ist nicht allzu bedeutend.

Mit Hilfe des Massenwirkungsgesetzes ergibt sich nach MADELUNG und WEISS<sup>20)</sup> eine komplizierte Formel für den Halleffekt im Mischleitungsgebiet. Aus ihr errechnet sich die Inversionsdichte zu

$$n_i^2 = \frac{3\pi}{8eR} \left[ \frac{3\pi}{8eR} + (N_D - N_A) \right] \left[ \frac{b_n - b_p}{b_n + b_p} \right]^2 \times \\ \left[ \frac{1}{2} \pm \frac{1}{2} \sqrt{1 - \frac{32b_nb_pR(N_D - N_A)e}{3\pi(b_n - b_p)^2} - \frac{8b_nb_p e R(N_D - N_A)}{3\pi(b_n - b_p)^2}} \right]$$

+ Vorzeichen für  $n$ -Typ,  $\pm$  Vorzeichen für  $p$ -Typ. Diese Formel geht etwas weiter als diejenige von MADELUNG und WEISS, denn mit dem negativen Zweig der Wurzel erfassen wir auch für Halbleiter vom  $p$ -Typ das Mischleitungsgebiet vor dem Erreichen des Maximums von  $|R|$ . Der positive Zweig der Wurzel beschreibt das Verhalten des Halbleiters bei noch höheren Temperaturen. Die Mehrzahl unserer Proben musste nach dieser Formel ausgewertet werden, denn die übliche Form

$$R = - \frac{3\pi}{8} \frac{1}{en_i} \frac{b-1}{b+1}$$

zeigt für  $b \sim 1$  zu grosse Vernachlässigungen. Viel schwerwiegender ist aber, dass für  $b \sim 1$  der Faktor entscheidend temperaturabhängig wird, sobald  $b_n$  und  $b_p$  nicht dem gleichen Temperatugesetz gehorchen (was sicher der Fall ist). Ohne dessen genaue Kenntnis wird es unmöglich, Halleffektmessungen auszuwerten. Wir haben deshalb, ganz entgegen dem üblichen Vorgehen,  $n_i$  nicht aus Halleffektmessungen bestimmt. Lediglich die Zahl der ionisierten Störstellen bei Zimmertemperatur

$$n_s = N_D - N_A = - \frac{3\pi}{8} \frac{1}{e} \frac{1}{R_{\text{const}}}$$

( $R_{\text{const}}$  = Wert des Halleffektes bei vollständig ionisierten Störstellen,  $R_{\text{const}} \sim R$  bei Zimmertemperatur) und für  $p$ -Typ Proben das Beweglichkeitsverhältnis  $b$  nach der Formel  $(b-1)^2/4 = b = R_{\text{max}}/R_{\text{const}}$  wurden aus Halleffektmessungen bestimmt ( $R_{\text{max}}$  = Maximalwert von  $|R|$  im Mischleitungsgebiet). Diese Beziehung folgt sofort, wenn man beachtet, dass  $R_{\text{max}}$  natürlich der Verzweigungspunkt in der Formel für  $n_i^2$  ist.

Die Beweglichkeiten  $b_n$  und  $b_p$  errechnen sich bei Kenntnis des Leitungstypes und des Beweglichkeitsverhältnisses aus dem Wert  $R\sigma$  bei Zimmertemperatur (reine Störleitung). Damit ist es möglich,  $n_i$  aus Leitfähigkeitsmessungen zu berechnen, was für  $b \sim 1$  viel genauer ist als Berechnungen auf Grund von Halleffektmessungen.

## c) Ergebnisse

Leider ist es uns nicht möglich, alle gemessenen Kurven (Leitfähigkeit und Halleffekt) für jede einzelne Probe widerzugeben. Wir müssen uns deshalb auf die Reproduktion einiger typischer Beispiele beschränken. Dafür sind aber die aus ihnen berechneten Grössen (Beweglichkeiten, Breiten der verbotenen Zonen, usw.) für alle 34 Proben als Funktion der Konzentration aufgetragen. Ganz generell fällt bei allen diesen Kurven auf, dass nirgends ein eindeutiger Unterschied zwischen ein-kristallinen und polykristallinen Proben feststellbar ist. Dies ist die wesentliche Voraussetzung dafür, dass unsere Messungen überhaupt physikalisch sinnvoll sind.

Figur 6 zeigt für einige Proben die Abhängigkeit von  $\log \sigma$  als Funktion von  $1000/T$ , wobei im wesentlichen nur das Eigenleitungsgebiet

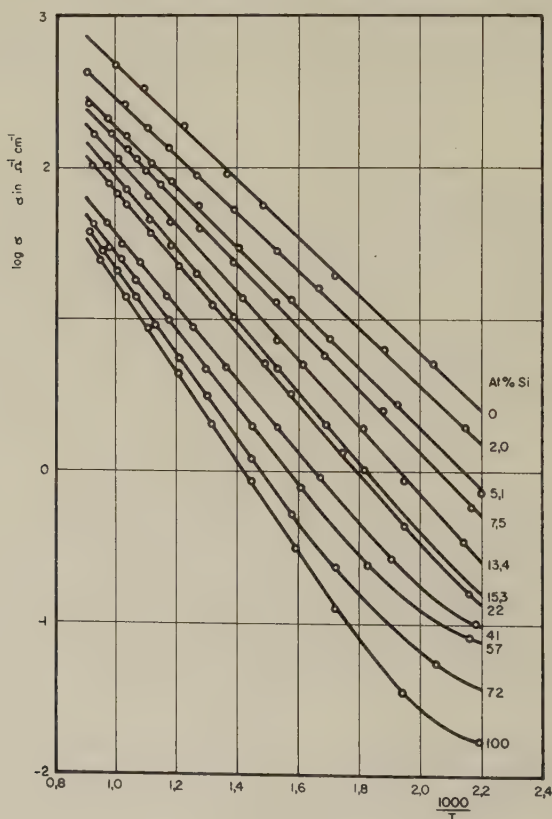


Fig. 6  
 $\log \sigma$  als Funktion von  $1000/T$

wiedergegeben ist. Auffallend ist der rasche Abfall des Absolutwertes mit zunehmender Si-Konzentration. Wir werden sehen, dass dieser ausschliesslich durch den Abfall der Beweglichkeiten zustande kommt.

Figur 7 zeigt für sämtliche Proben die aus den Steigungen der Leitfähigkeitskurven bestimmten Breiten der verbotenen Zone  $\Delta E$ . Die Streu-

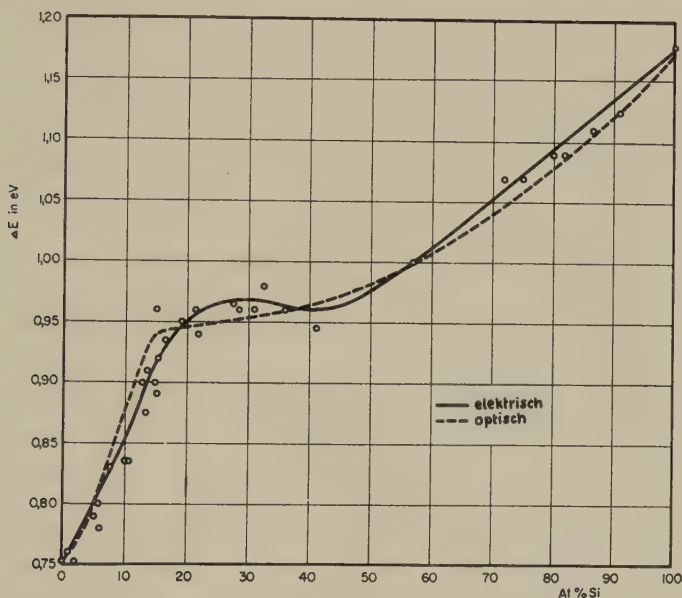


Fig. 7

Breite der verbotenen Zone als Funktion der Konzentration

ung der Werte ist relativ gross und deutlich aus der Kurve ersichtlich. Unsere Kurve unterscheidet sich deutlich von derjenigen nach BRAUNSTEIN, MOORE und HERMAN<sup>5)</sup>, welcher optische Absorptionsmessungen zugrunde liegen. Der Unterschied erklärt sich aus der Tatsache, dass zur Bestimmung der Breite  $\Delta E_0$  der verbotenen Zone aus Leitfähigkeitsmessungen eine lineare Temperaturabhängigkeit von  $\Delta E$  vorausgesetzt werden muss. Man misst also  $\Delta E$  bei Temperaturen von ca. 1000° K und extrapoliert linear bis zum absoluten Nullpunkt. Da die lineare Temperaturabhängigkeit von  $\Delta E$  nur eine erste Näherung ist, wird eine Bestimmung von  $\Delta E_0$  aus Leitfähigkeitsmessungen immer weniger zuverlässig sein als die direkte optische Messung bei tiefen Temperaturen.

Figur 8 zeigt die auf Zimmertemperatur extrapolierten Eigenleitfähigkeiten unserer Proben. Der recht grosse Bereich der  $\sigma_i$ -Werte schrumpft sofort zusammen, wenn man die Leitfähigkeiten bei hohen Temperaturen z. B. 1000° K vergleicht.

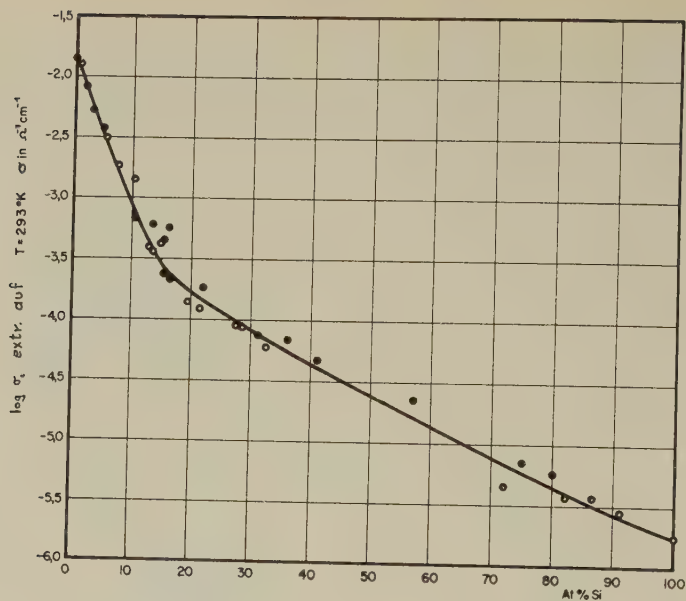


Fig. 8  
 $\log \sigma_i$  extrapoliert auf Zimmertemperatur

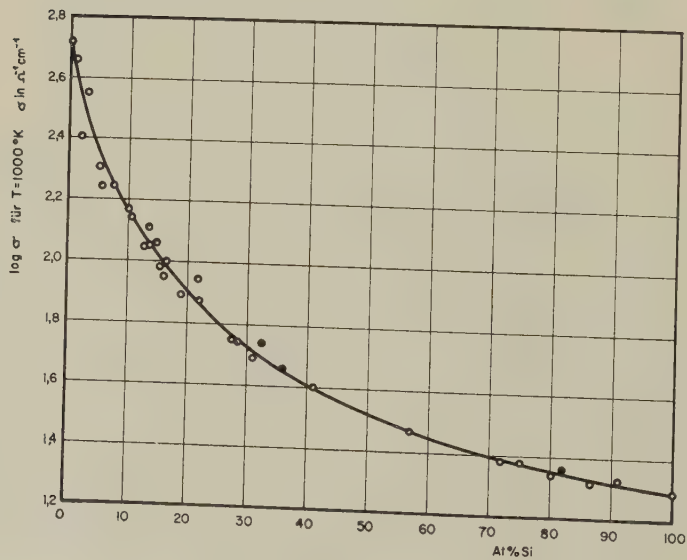


Fig. 9  
 $\log \sigma_i$  bei  $1000^\circ \text{K}$

Figur 9 beweist deutlich, dass die grosse Variation der Leitfähigkeitswerte in erster Linie durch die Breiten der verbotenen Zonen bedingt ist und dass bei höheren Temperaturen die Leitfähigkeiten aller Proben sich einander stark annähern. Wir werden die Werte von  $\sigma_i$  bei Zimmertemperatur brauchen zur Berechnung der Elektronenkonzentration  $n_i$ . Entsprechend dem relativ grossen Fehler bei der Messung von  $\Delta E_0$  ist auch hier die Streuung, wie aus der Kurve zu sehen ist, gross.

Figur 10 zeigt für eine typische Probe den Verlauf des Halleffektes. Überraschend ist die hohe Temperatur, bei welcher, trotz der geringen Zahl der Störstellen ( $1,8 \times 10^{15}/\text{cm}^3$ ), der Halleffekt sein Vorzeichen wechselt. Aus dem Verhältnis  $R_{\text{const}}/R_{\text{max}}$  errechnet man  $b = 1,0662$  mit

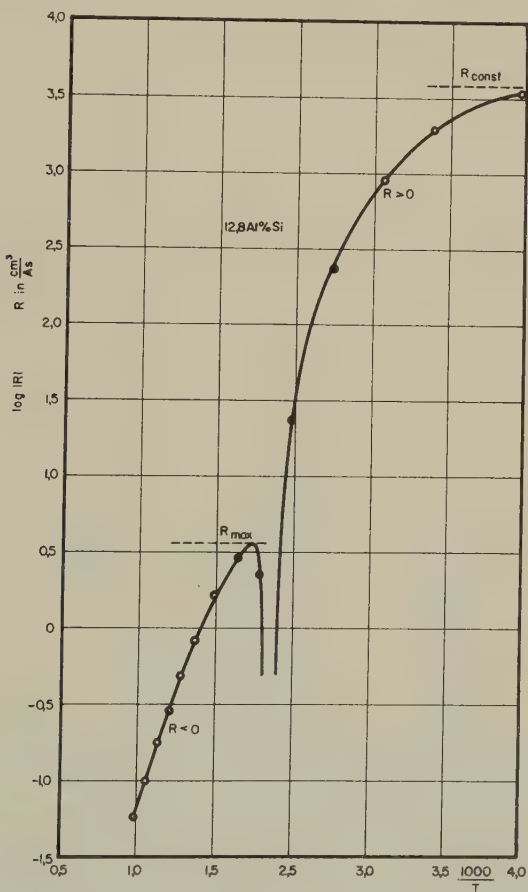


Fig. 10  
Halleffekt der Probe 12,8 At % Si



grosser Genauigkeit. Dieser Wert von  $b$  ist richtig für jene Temperatur, bei welcher  $R_{\max}$  erreicht wird, also etwa  $300^\circ\text{C}$ .

Einige Halleffektskurven im Bereich von 30 At % Si zeigen überhaupt keinen Vorzeichenwechsel des positiven Hallkoeffizienten bis zu Temperaturen von  $900^\circ\text{C}$ . Dies heisst aber, dass  $b$  so nahe bei 1 liegt, dass, etwas vereinfacht gesprochen, der Eigenleitungshallkoeffizient  $R_i = -3\pi/8 e \cdot 1/n_i \cdot (b - 1/b + 1)$  den Störleitungshallkoeffizienten  $R_s = -3\pi/8 e \cdot 1/n_s$  nicht kompensieren kann. Dies lässt sich exakt zeigen mit Hilfe der schon erwähnten Formel von MADELUNG und WEISS<sup>20)</sup> für den Halleffekt im Mischleitungsgebiet. Aber auch aus solchen Kurven ist  $b$  ohne weiteres genau genug ablesbar, denn auf alle Fälle ist  $1 < b < 1,001$ , d. h.  $b_n$  wird praktisch gleich  $b_p$ .

Figur 11 zeigt, nach der exakten Formel für  $n_i$  berechnet, das Verhältnis  $n_i/T^{3/2}$  logarithmisch gegen  $1000/T$  aufgetragen.

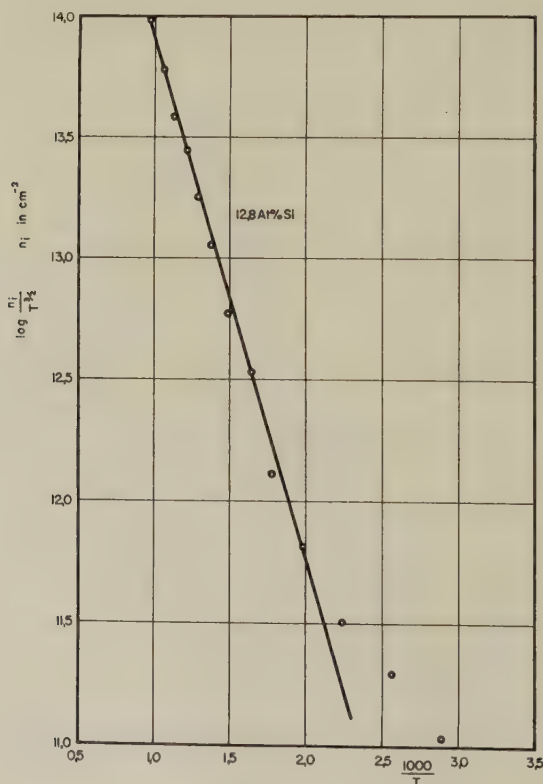


Fig. 11

$\log n_i/T^{3/2}$  als Funktion von  $1000/T$  für die Probe 12,8 At % Si

Bei der numerischen Ausrechnung sieht man aber sofort, dass die Werte für den negativen Zweig der Wurzel so stark von den Werten  $b$  und  $n_s$  abhängen, dass die Fehler (besonders des Faktors  $[3\pi/8 e R + n_s]$ ) zu gross werden, als dass man etwa die Breite der verbotenen Zone aus der Steigung der Geraden errechnen könnte. Der Absolutwert von  $n_i$  ist kritisch von  $b - 1$  abhängig, eine Grösse, die, wie oben erwähnt, temperaturabhängig sein wird. Deshalb ist für jene  $p$ -Typ-Proben, deren Hallkoeffizient das Vorzeichen nicht wechselt, die Bestimmung von  $n_i$  auf Grund von Halleffektmessungen mit genügender Genauigkeit überhaupt nicht möglich.

Figur 12 zeigt die aus den Halleffektkurven bestimmten Beweglichkeitsverhältnisse  $b$  (für  $n$ -Typ-Proben wurde  $b$ , wenn auch ungenau, aus den Leitfähigkeitskurven nach HUNTER<sup>21</sup>) bestimmt).

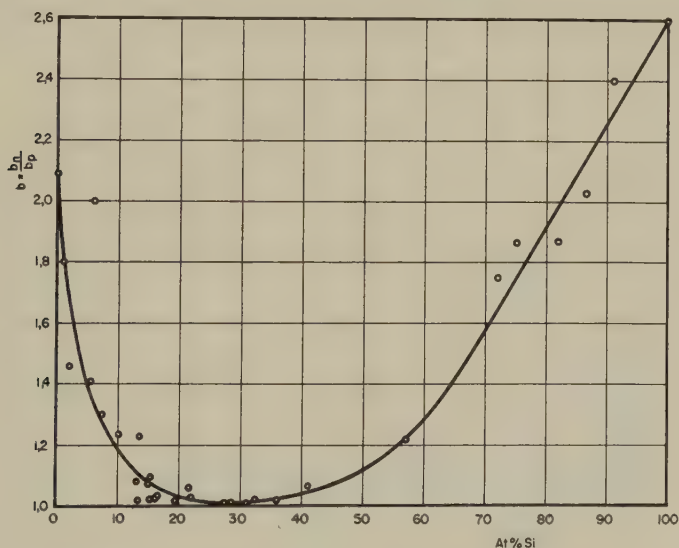


Fig. 12

Beweglichkeitsverhältnisse  $b$  für verschiedene Zusammensetzungen

Figuren 13 und 14 zeigen die  $\bar{\mu}$  aus dem Produkt  $R\sigma$  bei Zimmertemperatur bestimmten Beweglichkeiten  $b_n$  und  $b_p$ . Es ist möglich, beide aus zwei Anteilen zusammenzusetzen, einem  $b_1$  das, von Ge ausgehend, durch Zulegieren von wahllos angeordneten Si-Atomen infolge Störung des periodischen Potentials (alloy scattering) rasch abfällt und einem  $b_2$  das, von Si ausgehend, ebenso durch Zulegieren von Ge abklingt. Über die genauen Kurvenformen lassen sich auf Grund unserer Messungen keine eindeutigen Angaben machen.

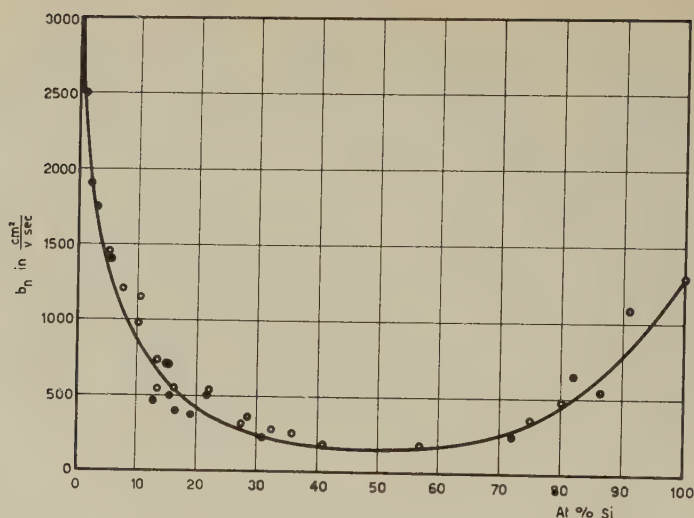


Fig. 13

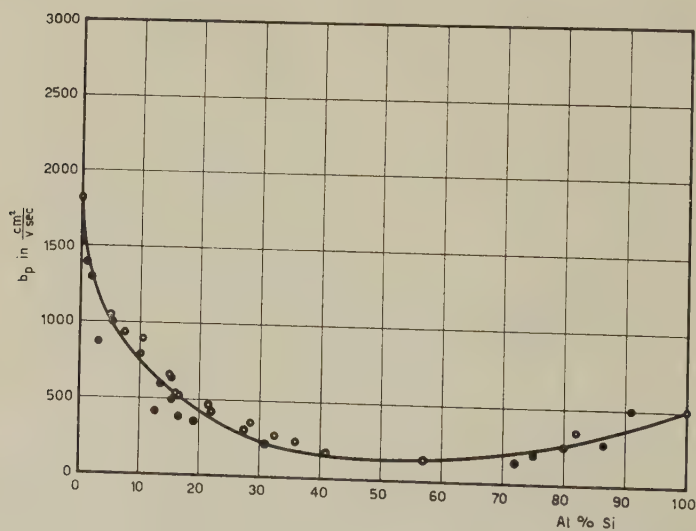
 $b_n$  = Elektronenbeweglichkeit

Fig. 14

 $b_p$  = Löcherbeweglichkeit

Die Beweglichkeiten sind sowohl für Löcher als auch für Elektronen bei ca. 50 At % Si minimal, wie man bei reinem «alloy scattering» auch erwartet. GLICKSMAN<sup>11)</sup> hat zudem an *n*-Typ-Proben zusätzlich noch Zwischenbandstreuung beobachtet (interband scattering). Unsere Mes-

sungen von  $b_n$  sind zu wenig genau, um diesen Effekt eindeutig festzustellen. Falls wir aber den Quotienten  $b = b_n/b_p$  betrachten, so muss der Effekt deutlicher in Erscheinung treten. Wir dürfen nämlich annehmen, dass das reine «alloy scattering» für Löcher und Elektronen mit zunehmender Si-Konzentration ähnlich stark zunimmt. Der Quotient  $b$  ist deshalb empfindlicher als  $b_n$  allein vom «interband scattering» abhängig. In der Tat zeigt die Kurve der  $b$ -Werte bei ca. 15 At% Si (bei dieser Konzentration müssen wir nach GLICKSMAN maximales «interband scattering» erwarten) schon den minimalen Wert. Aus unseren Messungen ist also, wenn auch indirekt, ebenfalls ein Einfluss der Zwischenbandstreuung ersichtlich.

Figur 15 zeigt die Inversionsdichte  $n_i$  berechnet aus der Formel  $n_i = \sigma_i/e (b_n + b_p)$  aufgetragen für  $T = 1000^\circ\text{K}$ . Überraschend ist, dass bis zu einem Gehalt von 50 At% Si die Inversionsdichte konstant zu bleiben scheint und erst dann monoton auf einen 10mal geringeren Wert abfällt.

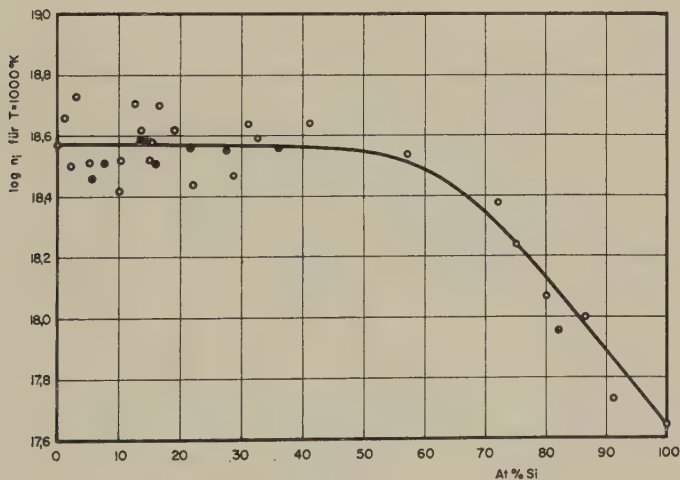


Fig. 15  
Inversionsdichte  $n_i$  bei  $1000^\circ\text{K}$

#### IV. Schluss

Mit Hilfe unserer Messungen ist es uns gelungen, Beweglichkeiten und Inversionsdichte als Funktion der Zusammensetzung für die ganze Mischkristallreihe Ge-Si zu bestimmen. Das elektrische Verhalten aller dieser Halbleiter lässt sich befriedigend mit dem Zweibandmodell beschreiben, nur bei Konzentrationen von ca. 15 At% Si muss zum Verständnis der Elektronenbeweglichkeit in einem Dreibandmodell auch Streuung zwischen den zwei Leitungsbändern berücksichtigt werden.

Dem Verein zur Förderung der Festkörperphysik an der ETH danken wir sehr für die Bereitstellung der finanziellen Mittel, welche diese Arbeit ermöglichten.

Ferner danken wir Herrn ALEXANDER BECK für seine Mithilfe bei der Herstellung der Proben und bei den Messungen.

### Literaturverzeichnis

- <sup>1)</sup> G. BUSCH und E. MOOSER, *Helv. Phys. Acta* **26**, 611 (1953).
- <sup>2)</sup> G. BUSCH, *Halbleiter und Phosphore*, S. 158 (1958).
- <sup>3)</sup> H. STÖHR und W. KLEMM, *Z. anorg. allg. Chem.* **241**, 305 (1939).
- <sup>4)</sup> E. R. JOHNSON und S. M. CHRISTIAN, *Phys. Rev.* **95**, 560 (1954).
- <sup>5)</sup> R. BRAUNSTEIN, A. R. MOORE und F. HERMAN, *Phys. Rev.* **109**, 695 (1958).
- <sup>6)</sup> E. R. JOHNSON und S. M. CHRISTIAN, *Phys. Rev.* **95**, 560 (1954).
- <sup>7)</sup> F. HERMAN, M. GLICKSMAN und R. H. PARMENTER, *Progr. Semicond.* **2**, 1.
- <sup>8)</sup> A. LEVITAS, *Phys. Rev.* **99**, 1810 (1955).
- <sup>9)</sup> M. GLICKSMAN, *Progr. Semicond.* **3**, 1 (1958).
- <sup>10)</sup> C. DRESSELHAUS, A. F. KIP und C. KITTEL, *Phys. Rev.* **100**, 1218 (1955).
- <sup>11)</sup> M. GLICKSMAN, *Phys. Rev.* **102**, 1496 (1956) **104**, 1278 (1956).
- <sup>12)</sup> M. GLICKSMAN, *Phys. Rev.* **100**, 1146 (1955).
- <sup>13)</sup> F. HERMAN, *Phys. Rev.* **95**, 847 (1954).
- <sup>14)</sup> R. H. PARMENTER, *Phys. Rev.* **104**, 22 (1956).
- <sup>15)</sup> W. G. PFANN, *Zone Melting*, John Wiley & Sons, Inc., New York (1958).
- <sup>16)</sup> J. R. HAYNES und W. SHOCKLEY, *Phys. Rev.* **81**, 835 (1951).
- <sup>17)</sup> K. A. MÜLLER und J. WIELAND, *Helv. Phys. Acta* **27**, 690 (1954).
- <sup>18)</sup> G. BUSCH und U. WINKLER, *Ergenb. d. exakt. Naturwiss.* **29**, 145–207 (1956).
- <sup>19)</sup> B. ABELES und S. MEIBOOM, *Phys. Rev.* **95**, 31 (1954).
- <sup>20)</sup> O. MADELUNG und H. WEISS, *Z. Naturforsch.* **9a**, 527 (1954).
- <sup>21)</sup> L. P. HUNTER, *Phys. Rev.* **91**, 579 (1953).



## Der Entropieverlauf in Supraleitern mit magnetischer Zulegierung

Jean Müller und Marcel Risi

Laboratorium für Festkörperphysik, ETH, Zürich

*Summary.* For superconductors in which ions with a non vanishing spin are dissolved, a first order transition from the superconducting to the normal state (without magnetic field) has been predicted theoretically. The measurement of the specific heat of a lanthanum-gadolinium mixed crystal shows, however, that no latent heat occurs at the critical temperature.

### Einleitung

Der Einfluss der Austauschwechselwirkung zwischen den supraleitenden Elektronen und eingelagerten paramagnetischen Ionen wurde von SUHL, MATTHIAS<sup>1)</sup> und von BALTENSPERGER<sup>2)</sup> nach der Theorie von BARDEEN, COOPER und SCHRIEFFER und einem Modell von HERRING behandelt. Die in zweiter Ordnung Störungstheorie durchgeführten Rechnungen führen auch ohne äusseres Magnetfeld zu einer endlichen Entropiedifferenz zwischen Normal- und Supraleiter am Sprungpunkt. Die Gültigkeit einer störungstheoretischen Behandlung des Phasenüberganges ist allerdings problematisch<sup>1)</sup>. MATTHIAS, SUHL und CORENZWIT<sup>3)</sup> untersuchten Legierungen zwischen Lanthan und seltenen Erden und bestimmten im Falle La-Gd die Abhängigkeit der supraleitenden kritischen Temperaturen und der ferromagnetischen Curiepunkte von der Konzentration. Dieser experimentelle Befund stimmt mit dem störungstheoretisch berechneten Verlauf<sup>2)</sup> befriedigend überein. In der vorliegenden Arbeit wurde die spezifische Wärme einer La-Gd-Mischkristallprobe im Temperaturgebiet der supraleitenden Umwandlung gemessen.

### Abschätzung der latenten Wärme

Figur 1 zeigt den von BALTENSPERGER berechneten Temperaturverlauf der Entropiedifferenzen bei verschiedener Störung durch die Austauschwechselwirkung. Die Temperaturen sind relativ zur kritischen Temperatur des ungestörten Supraleiters aufgetragen; der Kopplungsparameter  $K$  enthält die Stärke der Wechselwirkung und die Konzentration der magnetischen Ionen. Zur Abschätzung des zu erwartenden Entropie-

sprunges für einen bestimmten  $K$ -Wert genügt ein Vergleich mit der maximalen Entropiedifferenz (im Magnetfeld) des ungestörten Supraleiters.

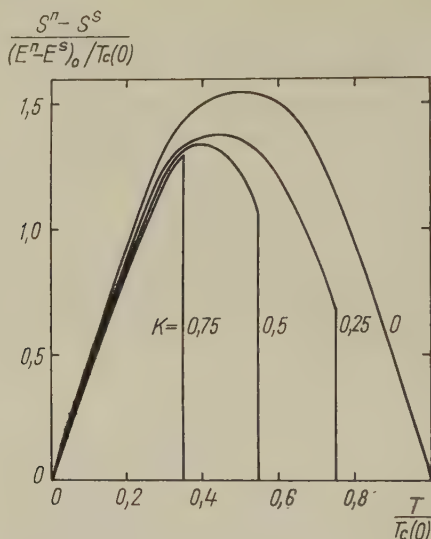


Fig. 1

Entropiedifferenzen gestörter Supraleiter nach BALTENSPERGER

Nach dem einfachen GORTER-CASIMIR-Modell<sup>4)</sup> (Abweichungen hievon sind im vorliegenden Fall unwesentlich) beträgt die Entropiedifferenz pro Mol

$$S_n - S_s = 2\mu_0 V_M \frac{H_0^2}{T_c^2} \cdot T \left[ 1 - \left( \frac{T}{T_c} \right)^2 \right], \quad (1)$$

deren Maximum somit

$$(\Delta S)_{\max.} = \frac{4\sqrt{3}}{9} \mu_0 V_M \frac{H_0^2}{T_c}. \quad (2)$$

$H_0$  bedeutet dabei das kritische Feld am absoluten Nullpunkt,  $V_M$  das Molvolumen und  $\mu_0$  die Induktionskonstante. Nach Einführung des Temperaturkoeffizienten  $\gamma$  der normalen spezifischen Elektronenwärme ergibt sich

$$(\Delta S)_{\max.} = \frac{2\sqrt{3}}{9} \cdot \gamma \cdot T_c(0). \quad (3)$$

Bezeichnet schliesslich  $\alpha_K$  den Bruchteil des zu erwartenden Entropiesprungs für den gestörten Supraleiter von der maximalen Differenz im ungestörten Fall, so wird die latente Wärme (für  $H = 0$ )

$$Q = \alpha_K \cdot \frac{2\sqrt{3}}{9} \cdot \gamma \cdot T_c(0) \cdot T_c(K). \quad (4)$$

## Resultate und Schlussfolgerung

Die Herstellung der Lanthan-Gadoliniumprobe erfolgte in einer Vakuum-Zonenschmelzanlage<sup>5)</sup>. Etwa 1/10 Mol Lanthan mit 0,5% Gadolinium wurden im wassergekühlten, versilberten Cu-Tiegel durch Hochfrequenzheizung erschmolzen und während mehrerer Zonendurchgänge homogenisiert. Mit Hilfe einer empfindlichen Apparatur<sup>6)</sup> war eine präzise kalorimetrische Messung der spezifischen Wärme im Heliumbereich trotz der relativ kleinen Substanzmenge möglich. Figur 2 zeigt den Temperaturverlauf der Molwärme des Mischkristalls, zusammen mit der

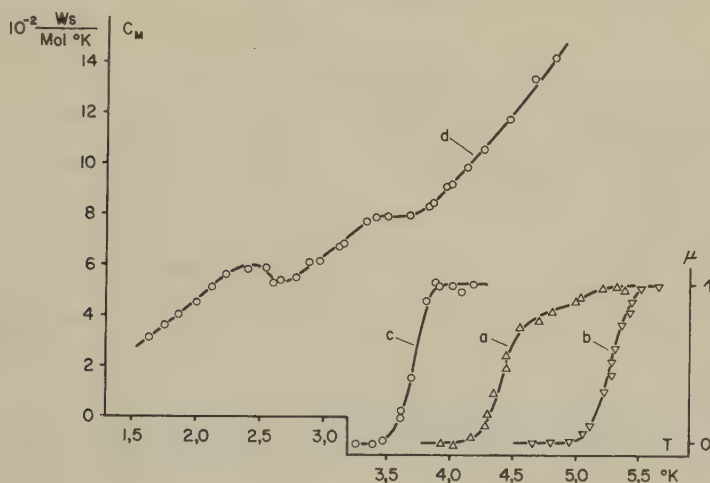


Fig. 2

Magnetische Umwandlungen von La-Ausgangsmetall (a), La zonengeschmolzen (b) und La + 0,5% Gd (c) sowie spezifische Wärme von La + 0,5% Gd (d).

magnetisch beobachteten Umwandlung. Vergleichsweise wurde die letztere auch für das Lanthan-Ausgangsmetall, ferner für auf dieselbe Weise wie die Legierung zonengeschmolzenes Lanthan gemessen. Die beiden kalorimetrisch sichtbaren Umwandlungen entsprechen den Sprungpunkten der koexistierenden kubischen und hexagonalen Phase. Im Hinblick auf die ausführlichen Untersuchungen von BERMAN, ZEMANSKY und BOORSE<sup>7)</sup> an reinem Lanthan wurden keine Versuche unternommen, einen kristallographisch einphasigen Mischkristall zu erzeugen. Bemerkenswert ist, dass durch magnetische Beobachtung nur die obere Umwandlung, bei etwa 3,7°K, wahrgenommen wird. Für die letztere ergeben sich aus den experimentellen Daten nach der Bedeutung von Gleichung (4) Werte von  $K \sim 1/3$ ,  $\alpha_K \sim 0,5$  und  $Q \sim 4 \cdot 10^{-2}$  Ws/Mol. Auch unter Berücksichtigung der Tatsache, dass eine Energie dieser Größenordnung auf die beiden Umwandlungen zu verteilen wäre, ist dies

mit der Messung unvereinbar. Die Phasenumwandlung kann deshalb nicht im Sinne von Figur 1 erster Ordnung sein.

In Figur 3 ist die spezifische Wärme von La-Gd mit derjenigen von reinem Lanthan nach BERMAN *et al.* verglichen. Daraus ist ersichtlich,

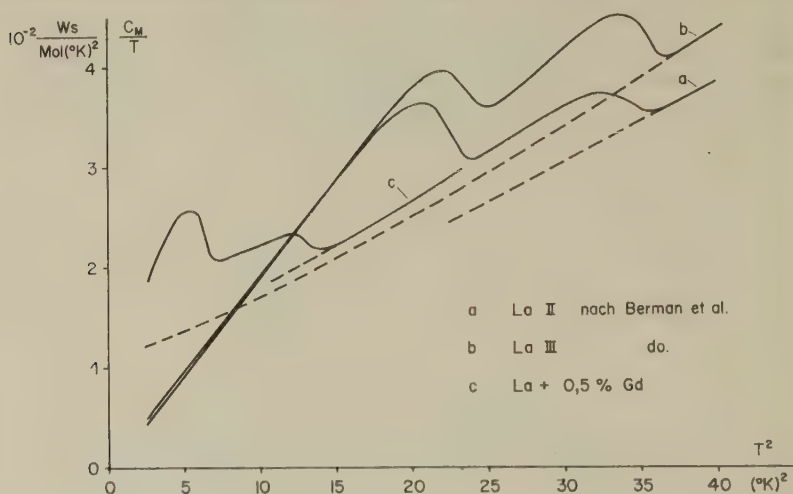


Fig. 3

Spezifische Wärme von La und La + 0,5% Gd

Die gestrichelten Kurven entsprechen der Messung im Magnetfeld

dass der Koeffizient  $\gamma$  des Elektronenanteils durch den Einbau von wenig Gadolinium nicht in signifikanter Weise verändert wird, was auch der theoretischen Erwartung entspricht.

Das Nichtauftreten eines Entropiesprunges lässt die Anwendbarkeit der Störungstheorie auf Probleme dieser Art fragwürdig erscheinen. Immerhin wäre es wünschenswert, den exakten Verlauf der Entropie am Sprungpunkt eines gestörten Supraleiters zu verfolgen, in dem die Komplikation der kristallographisch bedingten doppelten Umwandlung wegfällt.

Wir danken Herrn Professor G. BUSCH für seine Unterstützung, Herrn Dr. W. BALTENSBERGER für wertvolle Diskussionen und dem Schweizerischen Nationalfonds zur Förderung der wissenschaftlichen Forschung für finanzielle Hilfe.

### Literatur

- 1) H. SUHL und B. T. MATTHIAS, Phys. Rev. **114**, 977 (1959).
- 2) W. BALTENSBERGER, Helv. Phys. Acta **32**, 197 (1959).
- 3) B. T. MATTHIAS, H. SUHL and E. CORENZWIT, Phys. Rev. Lett. **1**, 92 (1958).
- 4) D. SHOENBERG, Superconductivity, Cambridge University Press (1952), p. 194 ff.
- 5) M. RISI, Publikation erfolgt später.
- 6) JEAN MÜLLER, Tagung der Schweiz. Phys. Gesellschaft, Winterthur, Mai 1960; Helv. Phys. Acta **33**, 514 (1960).
- 7) A. BERMAN, M. W. ZEMANSKY und H. A. BOORSE, Phys. Rev. **109**, 70 (1958).

# Galvanomagnetic Effects in Three-Band Semiconductors — Experiments with *p*-Type InSb\*)

by **Gaston Fischer**

National Research Council, Ottawa (Canada)

(3. III. 1960)

The resistivity and Hall coefficient of a *p*-type single crystal of InSb have been measured as a function of magnetic field strength and temperature. The ranges covered extend from 0 to  $\pm 8$  KOe and from 78° K to 300° K. Equations are derived for the Hall effect and the magnetoresistance which are applicable to isotropic semiconductors containing an arbitrary number of non-interacting degenerate bands, and valid for any magnetic field strength. In particular a three-band model is discussed in detail and formulae are given by which it is possible to derive values for the concentrations and mobilities of the various charge carriers from the dependence of the Hall coefficient and resistivity on the magnetic field. This model appears valid for *p*-type InSb in the extrinsic range. It predicts the presence of two kinds of hole with highly different mobilities. In the intrinsic range the model fails by giving a negative concentration of high mobility holes. An alternative model consisting of only one band of holes but taking various scattering mechanisms into account is found to be equally good at low temperatures, but also inadequate in the intrinsic range. The failure of these two models at high temperatures supports Ehrenreich's theory of predominantly polar scattering between 200° K and 500° K.

## 1. Introduction

Experimental evidence of the presence, in InSb, of two bands of holes has been recently reported<sup>1)2)</sup>. A detailed account of the situation regarding this question has been given by FREDERIKSE and HOSLER<sup>2)</sup>, and we refer the reader to their paper for extensive references. Theoretical treatments<sup>3)</sup> generally agree with an electronic structure consisting of one isotropic conduction band and two or three valence bands capable of contributing to the galvanomagnetic effects. A first valence band, observed in all experiments that depend on the electronic structure, is characterized by a high density of states and a heavy effective hole mass of about  $.18 m_0$ . The second band which is often postulated has a low density of states and a very small effective mass. Whereas everyone agrees that the light hole band is isotropic, opinions are divided about the heavy mass band. A third band with a very heavy mass of  $1.2 m_0$ , has only been

---

\*) Submitted in partial fulfilment for a Ph. D. degree at the University of Neuchâtel.



observed in cyclotron resonance experiments<sup>1</sup>), and, in agreement with theory, it is assumed to lie energetically much lower<sup>2)3)</sup>.

FREDERIKSE and HOSLER<sup>2)</sup> tried to obtain information on the band structure of InSb by performing galvanomagnetic measurements on *p*-type material below 78° K. They can explain their results with either one kind of hole and scattering predominantly through ionized impurities, or else two kinds of hole and mainly thermal scattering (scattering through thermal waves). In view of the theoretical band calculations and the evidence from cyclotron resonance experiments<sup>1)</sup> they decide in favor of the second mechanism. With the hope of obtaining a decisive choice between the two models proposed we have performed systematic galvanomagnetic measurements on a similar sample of *p*-type InSb – kindly given to us by Dr. FREDERIKSE –, but in a different temperature range. This range, between liquid nitrogen and room temperature, was so chosen as to insure an increased contribution to scattering by lattice waves. If the light mass holes postulated at low temperatures belong to a valence band, it is reasonable to assume that their number should increase with temperature; this increase need not, however, be in proportion to that of the heavy mass holes. A decrease of the number of light holes would necessitate a rather improbable temperature dependence of the band structure, or else a completely different origin would have to be attributed to these holes, for example, some kind of surface states. With the assumption of predominantly thermal scattering we would also expect holes from a valence band to show a mobility that decreases with increasing temperature. When thermal scattering alone is assumed the velocity distribution of the charge carriers in a non-degenerate semiconductor will lead to a certain variation of the resistivity and Hall coefficient with the magnetic field<sup>4)</sup>. However, these variations are relatively small and can not account for the variations observed (cf. section 4). We shall ignore this effect in the discussion of our three band model, assuming a *uniform, field independent* mobility in each band. In other words, each band is treated as a degenerate and isotropic band as in some metals. This model, which will be discussed in greater details in sections 3 to 6, appears, at first, to account extremely well for the properties observed; but when the computation is carried out completely certain inconsistencies are revealed. One finds a concentration of fast holes which decreases when temperature increases, becoming even negative above 150° K. At the same time a mobility of the fast holes is found that increases steadily with temperature, reaching values of about  $2 \times 10^5$  cm<sup>2</sup>/V. sec. While some explanation might be found for these unusual dependences on temperature, the negative charge concentration that would be required is indicative of the failure of the model in the intrinsic range.

It will be shown in section 7 that the alternative model of two bands only, with scattering by ionized impurities as well as lattice waves, is also inadequate at high temperatures. The reason for the failure of both models above 150° K probably lies in the rapid onset of a new scattering mechanism. EHRENREICH<sup>5)</sup> has shown that between 200° K and 500° K polar scattering (i. e. scattering through longitudinal optical modes of vibration) is predominant. EHRENREICH's calculations nevertheless support a three-band model.

Hall effect and conductivity of InSb as a function of magnetic field have been measured by many investigators, but the first systematic description of a model consisting of three bands was given by WILLARDSON<sup>6)</sup> in an investigation of *p*-type germanium. A fine structure analysis of a number of *p*-type semiconductors has been carried out by BEER<sup>7)</sup> and BEER and WILLARDSON<sup>8)</sup>. Their experiments on germanium, silicon, diamond and aluminum antimonide reveal maxima and minima which they can explain with a complex scattering mechanism and the presence of two kinds of hole. To carry out such an analysis requires the help of big computing devices.

## 2. Experimental Procedure

From a *p*-type single crystal of InSb a sample appropriate to the measurements was ground to size with fine emery paper since the material was too brittle to be cut with a diamond saw. Orientation and dimensions of this sample are given in Table I. The sample was mounted in the same

Table I  
Dimensions in mm and Orientation of the Single Crystal Sample

	$l$	$\delta$	$d$	$w$	$t$
Dimension . . .	16	16	4.80	3.86	1.14
Orientation. . .	(100)	(100)	(100)	9° off (010)	9° off (001)
$l$ = length of sample; $\delta$ = distance between current leads; $d$ = distance between potential leads; $w$ = width; $t$ = thickness					

way as described in a previous paper<sup>9)</sup>, but the current leads were soldered onto the whole areas of the smallest sample faces in order to ensure a more regular potential distribution. The soldering was done with indium, platinizing solution being used as a flux. The geometry of the sample is a factor which can substantially affect galvanomagnetic measurements. The work of LIPPMAN and KUERT<sup>10)</sup> indicates that with the dimensions of our sample the Hall constant should not be affected by more than one percent, while a rather greater alteration must be expected in the magnetoresistance, particularly at higher fields. The technique of pressure

contacts for the potential and Hall voltage leads<sup>9)</sup> provides very small areas of contact to the sample, along lines of constant potential, and should thus cause only a very small perturbation.

Our measurements were consistently performed between  $-8$  KOe and  $+8$  KOe. No significant asymmetry in the magnetoresistance or Hall effect was found. The largest difference between the positive and negative branches of the resistivity curves was only 2%; it was systematically in one direction below  $190^\circ\text{K}$  and in the other direction above, being greatest at the highest temperatures. Except in the vicinity of the sign reversal,

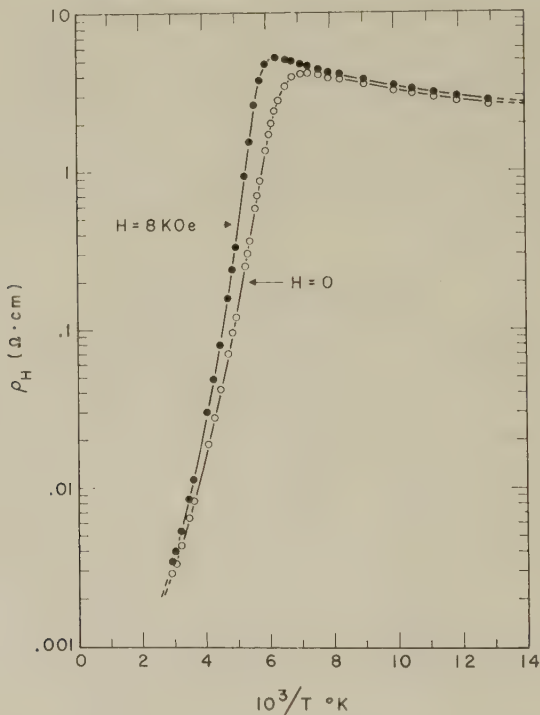


Fig. 1

Resistivity versus temperature of a single crystal of InSb at magnetic fields of 0 and 8 KOe

at  $150^\circ\text{K}$ , the Hall coefficient was found to be perfectly symmetrical with the magnetic field  $H$ . Where it changes sign the Hall coefficient is so sensitive to any change in the concentration of impurities that an appreciable systematic asymmetry must be expected. The range of temperature over which this occurs is narrow, from  $150^\circ\text{K}$  to  $170^\circ\text{K}$ , and if one takes averages between the positive and negative field readings one may expect

to obtain reasonable results. For the sake of consistency this averaging procedure was carried out with all measurements of the resistivity,  $\rho_H$ , and the Hall voltage,  $V_H$ . The almost perfect symmetry observed justifies the technique of pressure-contacts, and indicates a high degree of homogeneity of the sample<sup>11</sup>).

The magnetic field was calibrated with a nuclear magnetic resonance spectrometer. Care was taken to identify the whole hysteresis cycle; when resetting a certain field the current was first increased well into the saturation range and then monotonically decreased to the appropriate value. The accuracy in resetting a given field was of the order of  $\pm 10$  Oersteds.

Figs. 1 and 2 reproduce the temperature dependence of the resistivity and Hall effect in the fields  $H = 0$  and  $H = 8$  KOe. With these properties we can obtain a rough estimate of the purity of our sample by assuming that only one kind of hole is present at liquid nitrogen temperature and by simply equating the number  $n_2$  of these holes to the number  $N$

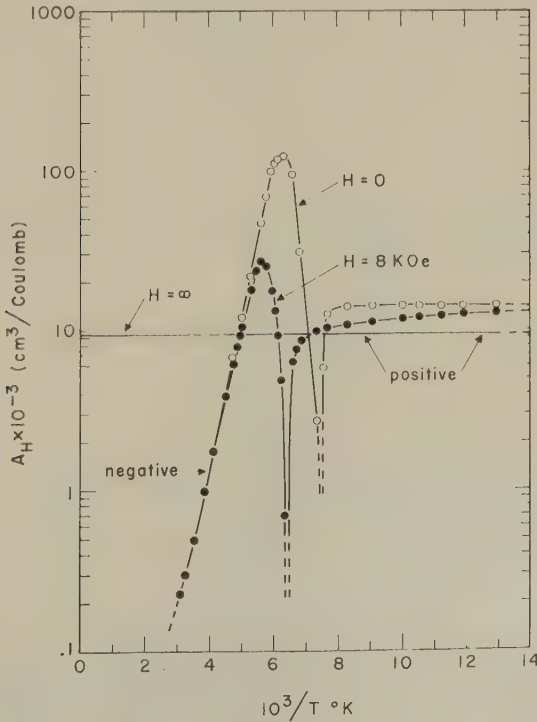


Fig. 2

Hall coefficient versus temperature of a single crystal of InSb at magnetic fields of 0, 8 KOe and  $\infty$

of acceptors per  $\text{cm}^3$ . We shall use the approximate equations (2.1) and (2.2) to perform this computation (the symbols are defined in the next section).

$$\varrho_0(77^\circ\text{K}) = \frac{1}{n_2 e b_2} = 2.6 \, \Omega \text{ cm} \quad (2.1)$$

$$A_0(77^\circ\text{K}) = \frac{1}{n_2 e} = 14 \times 10^3 \text{ cm}^3/\text{Coulomb} \quad (2.2)$$

From (2.2) one readily obtains

$$n_2 = N = \frac{1}{e A_0} = 4.5 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3} \quad (2.3)$$

and with (2.1) one can get  $b_2$  as

$$b_2 = \frac{1}{n_2 e \varrho_0} = 5.4 \times 10^3 \text{ cm}^2/\text{V. sec} \quad (2.4)$$

### 3. Equations of the Three-Band Semiconductor

We shall follow CHAMBERS<sup>12)</sup> to derive the resistivity  $\varrho_H$ , and Hall coefficient,  $A_H$ , of a three-band semiconductor. Let us define

$$t_i = A_{Hi} \sigma_i H \quad (3.1)$$

and

$$\varnothing_i = \frac{\sigma_i}{1 + t_i^2} \quad (3.2)$$

where  $\sigma_i$  and  $A_{Hi}$  are the conductivity and Hall coefficient of the *separate* band  $i$ . Chambers has shown that for any number  $n$  of *non interacting* and *isotropic* bands one can write

$$\varnothing = \sum_{i=1}^n \varnothing_i \quad (3.3)$$

and

$$\varnothing t = \sum_{i=1}^n \varnothing_i t_i \quad (3.4)$$

with  $\varnothing$  and  $t$  related to the conductivity  $\sigma$  and the Hall coefficient  $A_H$  of the complete system:

$$t = A_H \sigma H \quad (3.5)$$

$$\varnothing = \frac{\sigma}{1 + t^2} \quad (3.6)$$

It is worth noting that the field  $H$  is proportional to every  $t_i$  and to  $t$ . If we assume in each band  $i$  a concentration of carriers  $n_i$  and a *uniform mobility*  $b_i$ , we can write

$$i = n_i e b_i \dots \quad (i = 1, 2, \dots n) \quad (3.7)$$



and

$$A_{Hi} = \frac{1}{n_i e c} \quad (3.8)$$

Expressions (3.7) and (3.8) are given with the convention that  $e$  is taken positive, electrons are attributed negative  $n_i$  and  $b_i$ 's, and holes are given positive  $n_i$  and  $b_i$ 's.

From (3.5) and (3.6) it is now possible to calculate the resistivity  $\varrho_H = 1/\sigma$  and the Hall coefficient  $A_H$  of the complete system:

$$\varrho_H = \frac{1}{e} \cdot \frac{\sum_i n_i b_i \left\{ \prod_j^{j \neq i} (1 + b_j^2 H^2) \right\}}{\sum_i n_i^2 b_i^2 \left\{ \prod_j^{j \neq i} (1 + b_j^2 H^2) \right\} + 2 \sum_{i,k}^{i \neq k} n_i n_k b_i b_k (1 + b_i b_k H^2) \left\{ \prod_j^{j \neq i,k} (1 + b_j^2 H^2) \right\}} \quad (3.9)$$

$$A_H = \frac{1}{e c} \cdot \frac{\sum_i n_i b_i^2 \left\{ \prod_j^{j \neq i} (1 + b_j^2 H^2) \right\}}{\sum_i n_i^2 b_i^2 \left\{ \prod_j^{j \neq i} (1 + b_j^2 H^2) \right\} + 2 \sum_{i,k}^{i \neq k} n_i n_k b_i b_k (1 + b_i b_k H^2) \left\{ \prod_k^{j \neq i,k} (1 + b_j^2 H^2) \right\}} \quad (3.10)$$

It is seen at once that both formulae are quotients of two even polynomials of order  $2(n-1)$  in  $H$ , where  $n$  is the number of bands. The polynomials of the two denominators are identical.

We shall now consider a three-band model. Expressing everything in laboratory units<sup>9)</sup>, and writing  $(10^{-8} H)^2 = x$ , one can reduce (3.9) and (3.10) to the following simple formulae

$$\varrho_H = \frac{1}{e} \cdot \frac{A + Bx + Lx^2}{A^2 + Dx + Mx^2} \quad (3.11)$$

$$A_H = \frac{1}{e} \cdot \frac{E + Fx + Nx^2}{A^2 + Dx + Mx^2} \quad (3.12)$$

For the various parameters of these formulae one obtains:

$$A = n_1 b_1 + n_2 b_2 + n_3 b_3 \quad (3.13)$$

$$B = n_1 b_1 (b_2^2 + b_3^2) + n_2 b_2 (b_1^2 + b_3^2) + n_3 b_3 (b_1^2 + b_2^2) \quad (3.14)$$

$$L = (n_1 b_2 b_3 + n_2 b_1 b_3 + n_3 b_1 b_2) b_1 b_2 b_3 \quad (3.15)$$

$$D = (n_1 + n_2)^2 b_1^2 b_2^2 + (n_1 + n_3)^2 b_1^2 b_3^2 + (n_2 + n_3)^2 b_2^2 b_3^2 + 2 n_1 n_2 b_1 b_2 b_3^2 + 2 n_1 n_3 b_1 b_3 b_2^2 + 2 n_2 n_3 b_2 b_3 b_1^2 \quad (3.16)$$

$$M = (n_1 + n_2 + n_3)^2 b_1^2 b_2^2 b_3^2 \quad (3.17)$$

$$E = n_1 b_1^2 + n_2 b_2^2 + n_3 b_3^2 \quad (3.18)$$

$$F = n_1 b_1^2 (b_2^2 + b_3^2) + n_2 b_2^2 (b_1^2 + b_3^2) + n_3 b_3^2 (b_1^2 + b_2^2) \quad (3.19)$$

$$N = (n_1 + n_2 + n_3) b_1^2 b_2^2 b_3^2 \quad (3.20)$$

The parameter  $\Lambda$ , defined in previous papers<sup>9)13)</sup>, is not explicitly independent of the magnetic field  $H$ , as it is for the two-band model.

$$\Lambda = \left( \frac{A_H - A_0}{A_0} \right) / \left( \frac{\varrho_H - \varrho_0}{\varrho_0} \right) = \frac{A^2 F - ED + (A^2 N - EM)x}{E(AB - D) + E(AL - M)x} \quad (3.21)$$

If the coefficients of the above expression for  $\Lambda$  are independent of  $H$ , then  $\Lambda$  cannot become an extremum at fields other than  $H = 0$  or  $H = \infty$ .

We shall now discuss the properties of our three-band model, with the additional assumption that all charge carrier concentrations and mobilities are independent of the magnetic field.  $n_1$  and  $b_1$  are attributed to electrons and are thus negative.  $n_2$  and  $b_2$  refer to the heavy holes,  $n_3$  and  $b_3$  refer to the light holes, and these four parameters are therefore positive. The light holes are assumed to have a higher mobility, and they belong to a band with a lower density of states; one can then write the inequalities

$$n_2 \gg n_3 \quad (3.22)$$

$$b_2 < b_3 \quad (3.23)$$

We shall also assume that the mobility  $b_1$  of the electrons is larger than the mobility  $b_2$  of the heavy holes. Thus

$$-b_1, b_3 > b_2 > 0 \quad (3.24)$$

In principle it should be possible to solve the system (3.13) to (3.20), obtaining first two relations between the eight equations; this would reduce the system to only six equations. Then secondly, solve for the six physical parameters  $n_1$  to  $b_3$ . However, the complexity of the system is so great that it seems appropriate to try first to determine the general and particular characters of our model for the two kinds of material,  $p$ - and  $n$ -type.

#### 4. Discussion of a $p$ -type model of InSb

We shall speak of a  $p$ -type semiconductor when, for every temperature,

$$\mathfrak{N} = n_1 + n_2 + n_3 > 0 \quad (4.1)$$

If all acceptors and donors are fully ionized,  $\mathfrak{N}$  will be a constant; this will happen at all temperatures where  $kT$  is much greater than the ionization energy of the acceptors and donors. We can check if  $\mathfrak{N}$  is a constant in our sample over the temperature range of our measurements, since

$$A_\infty \equiv A_{H \rightarrow \infty} = \frac{1}{e} \cdot \frac{N}{M} = \frac{1}{e\mathfrak{N}} \quad (4.2)$$

Figure 3 strongly suggests that  $A_\infty$ , and therefore also  $\mathfrak{N}$ , are constant. Equation (4.2) is of a very general character; if we write  $\mathfrak{N} = \sum_{i=1}^n n_i$ , then for a system of any number  $n$  of separate bands,

$$A_\infty = \frac{1}{e\mathfrak{N}_\infty} \quad (4.3)$$

where  $\infty$ , the subscript of  $\mathfrak{N}$ , means that any change in the concentrations  $n_i$  due to the magnetic field has to be taken into account. This result is no different from the conclusions which can be drawn from a one- or two-band model, and the observed constancy of  $A_\infty$  with temperature does not provide evidence in favor of any particular number of bands. It is, nevertheless, interesting to note the good convergence of all the curves of Figure 3 towards a constant, mobility independent  $A_\infty$ , particularly if we remember that at finite fields the Hall coefficient can depend very much on the mobilities.

Let us consider the ratio

$$\frac{A_0}{A_\infty} = \frac{EM}{A^2N} = \frac{n_1 b_1^2 + n_2 b_2^2 + n_3 b_3^2}{(n_1 b_1 + n_2 b_2 + n_3 b_3)^2} \cdot \mathfrak{N} \quad (4.4)$$

$$\frac{A_0}{A_\infty} = \frac{n_1 \mathfrak{N} b_1^2 + n_2 \mathfrak{N} b_2^2 + n_3 \mathfrak{N} b_3^2}{(n_1 b_1 + n_2 b_2 + n_3 b_3)^2} \quad (4.5)$$

At very low temperatures  $n_1$  vanishes (our sample is free of donors, cf. Table III), and  $\mathfrak{N}$  simply equals  $n_2 + n_3$ . Because of (3.23) it is then possible to have

$$\frac{A_0}{A_\infty} > 1 \quad (4.6)$$

This result is very important, since it cannot be obtained with a two-band model of carriers with opposite charges. A two-band semiconductor with carriers of opposite charges requires condition

$$\frac{A_0}{A_\infty} \leq 1 \quad (4.7)$$

Our present measurements on single crystalline InSb, as well as unpublished ones on a polycrystalline sample, indicate that condition (4.6) is fulfilled and give support to a model of at least two kinds of hole. At this point it can be argued that with the consideration of thermal scattering our findings could be explained within the framework of a two-band model. WILSON<sup>4</sup>) has shown that owing to the thermal spread of the velocities a semiconductor will require

$$\frac{A_0}{A_\infty} \leq \frac{3\pi}{8} = 1.18 \quad (4.8)$$

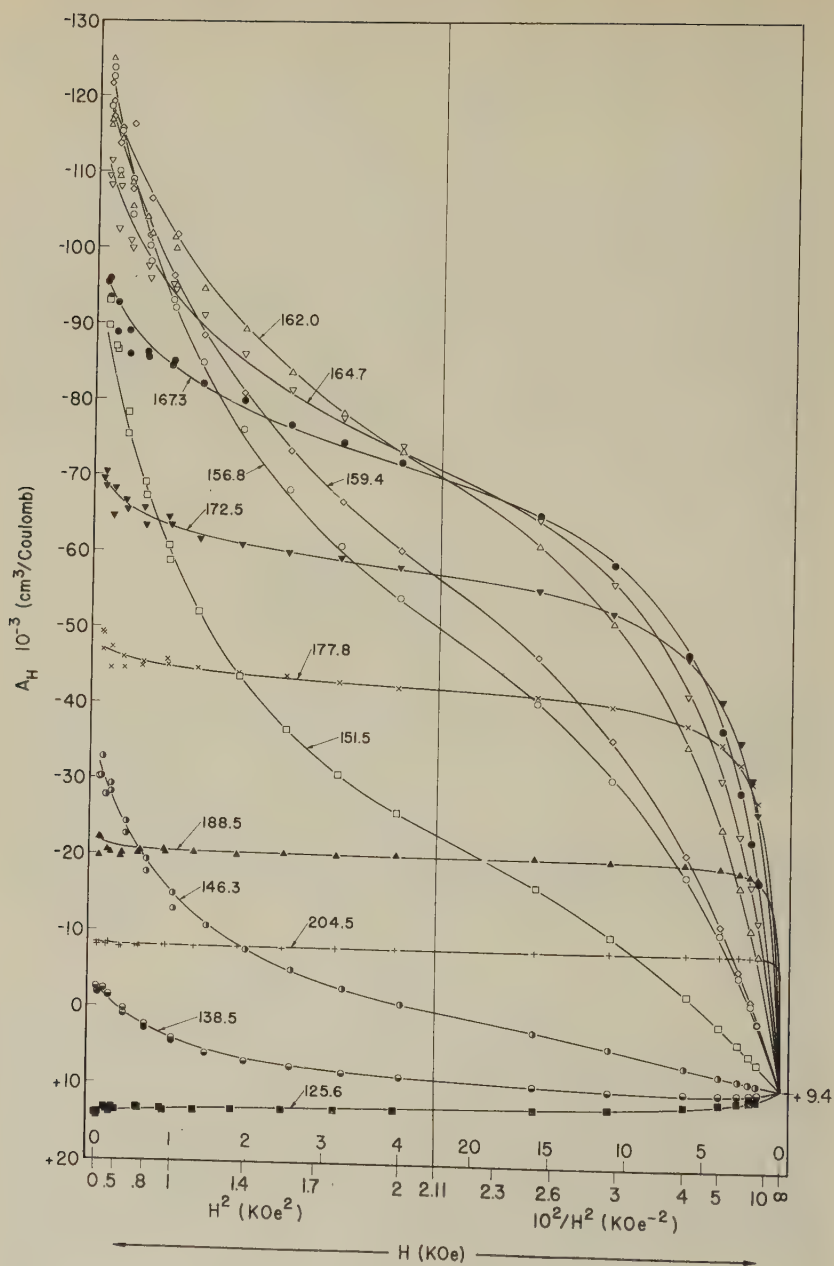


Fig. 3

Our measurements give, however, a definitely larger ratio. According to Figure 3 we have

$$\frac{A_0}{A_\infty} = \frac{13,900}{9,400} = 1.48 \quad (4.9)$$

and the value obtained with a polycrystal is about 1.35. These results, therefore, are easier to explain with two kinds of hole than with a thermal spread of velocities. HROSTOWSKI *et al.*<sup>14)</sup> also observed a ratio greater than 1.18.

It can be seen that within a certain range of temperatures the same ratio  $A_0/A_\infty$  can obtain negative values of a magnitude several times greater than unity. This prediction, which is well realized in our measurements in the range of 145°K to 195°K (cf. Fig. 2), is only typical of semiconductors with carriers of opposite signs.

There is, however, a property which can only occur in semiconductors with uniform mobilities in each band when at least three kinds of carrier are present; this is an extremum of  $A_H$  for fields different from zero or infinity. Considering condition (4.10),

$$\frac{\partial A_H}{\partial x} = 0 \quad (4.10)$$

we obtain

$$x^2 (ND - FM) + 2x (NA^2 - ME) + A^2 F - ED = 0 \quad (4.11)$$

and look for positive roots of this equation. Let us start by rewriting equation (4.11) in the simpler manner

$$ax^2 + 2bx + c = 0 \quad (4.12)$$

A careful study will show that at the lowest temperatures all three coefficients  $a$ ,  $b$  and  $c$  of this equation are negative. One by one these coefficients change sign in going through zero. First to change is  $c$ , then  $b$  and finally  $a$ . In the range where  $a$  and  $c$  have opposite signs there will be a maximum of  $A_H$  versus  $H$ . Outside this range there will be no extremum (cf. Table II and Fig. 3). No such extremal values are possible with a similar two-band model. The present three-band model could thus explain the maximum in the Hall coefficient observed by HOWARTH *et al.*<sup>15)</sup> as well as in our present (Fig. 3) and previous<sup>9)</sup> papers.

Fig. 3

Hall coefficient versus magnetic field of a single crystal of InSb at various temperatures. The points are experimental and the curves are calculated. Note the change of scale on the abscissa to bring out the important features near  $H = 0$  and  $H = \infty$ . An appropriate choice of scales for the two halves of the diagram will ensure continuous derivatives. The scales on the abscissa are the same as in Fig. 4, and the reader is referred to that figure for greater clarity.



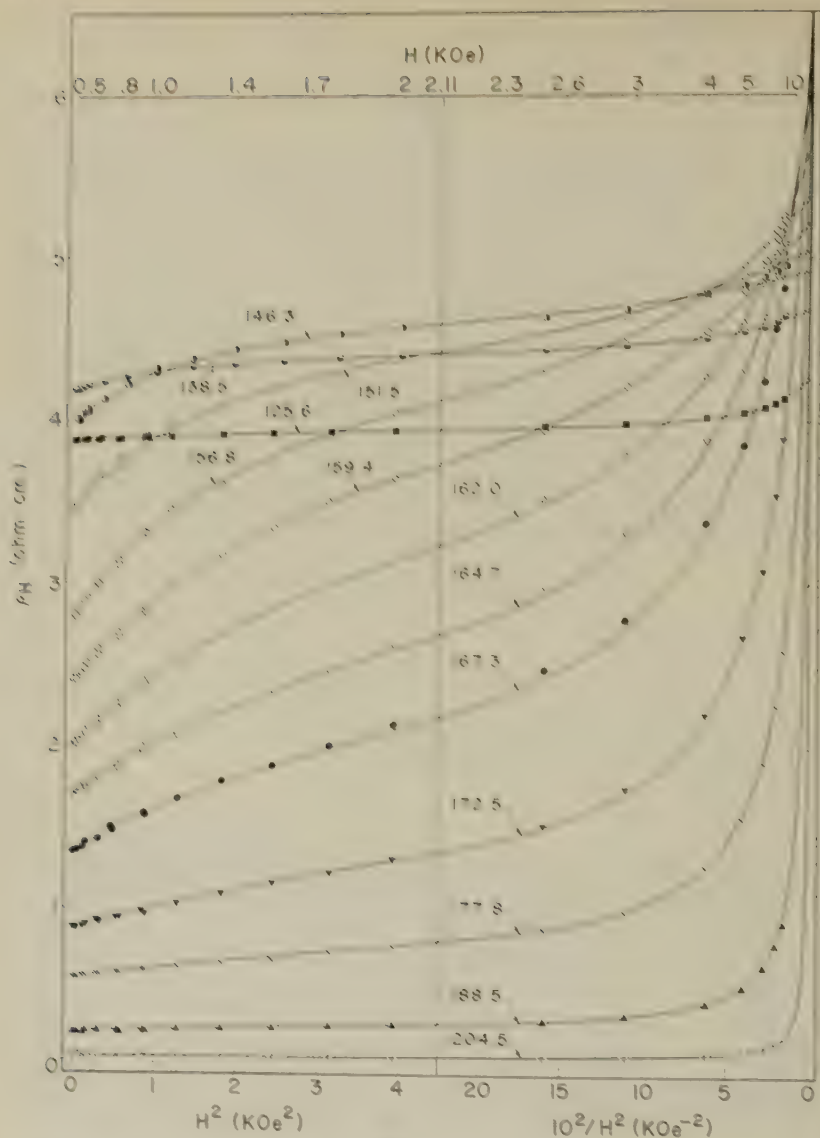


Fig. 4

Resistivity versus magnetic field of a single crystal of InSb at various temperatures. The points are experimental and the curves are calculated. Note the change of scale as in Fig. 3

We have now gathered sufficient information to predict the general behaviour of  $A_H$  versus magnetic field  $H$  and temperature for a  $p$ -type semiconductor having two types of positive charge carrier. In Figure 3

calculated curves are displayed which are of the type (3.12) and also fit, as well as possible, our own measurements. There is good agreement.

A discussion of the resistivity  $\varrho_H$  similar to the above discussion of  $A_H$  is not of great interest, since there is no essential difference between the predictions for  $\varrho_H$  of a two- and three-band model. The differences are only quantitative. Figure 4 gives calculated curves according to (3.11) and our measured points. The denominator of the calculated  $\varrho_H$  curves is the same as that of the Hall coefficient curves (Fig. 3), as required by the theory. The numerator ignores the two unknown relations which must exist between all the parameters involved in the formulae (3.11) and (3.12) and was simply chosen to give a satisfactory fit.

Table II and Figures 5 and 6 give the values chosen for the parameters appearing in formulae (3.11) and (3.12), at the various temperatures of our measurements.

In section 6 a complete solution of the system of equations (2.13) to (2.20) is given, and a computation of the charge carrier concentrations and mobilities is carried out.

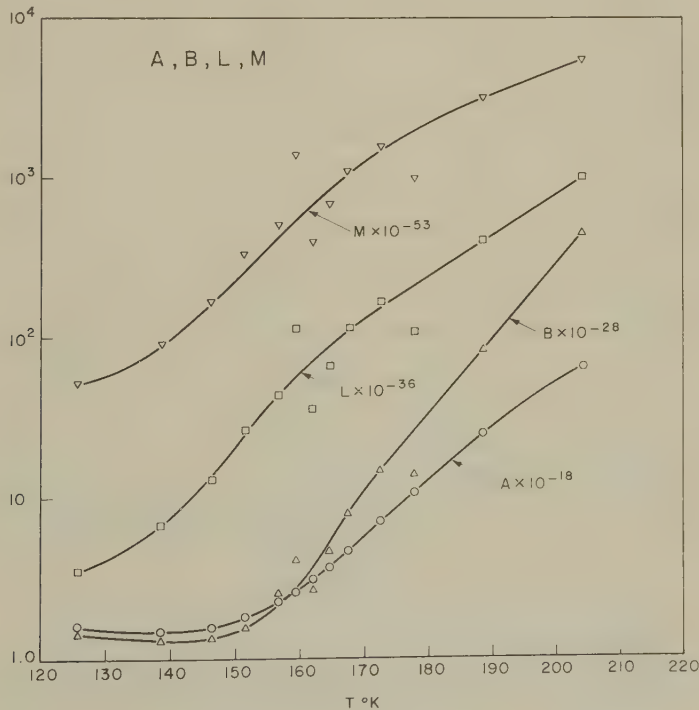


Fig. 5

Parameters  $A$ ,  $B$ ,  $L$ , and  $M$  of formulae (2.11) and (2.12) versus temperature.

Table II

Coefficients  $A$ ,  $B$ ,  $D$ ,  $E$ ,  $F$ ,  $L$ ,  $M$ , and  $N$  of formulae (2.11) and (2.12) as derived from the experiments. Calculated values of  $B$  and  $L$  are obtained in a manner described in Section 5. The coefficients  $a$ ,  $b$ , and  $c$  are defined in formulae (3.12) and (3.11)

$T^{\circ}\text{K}$	125.6	138.5	146.3	151.5	156.8	159.4	162.0	164.7	167.3	172.5	177.8	188.5	204.5
$A \cdot 10^{-18}$	1.611	1.491	1.564	1.800	2.232	2.593	3.100	3.668	4.630	7.078	10.74	24.80	65.10
$B \cdot 10^{-28}$	1.435	1.297	1.349	1.575	2.567	4.111	2.713	4.677	7.963	14.85	13.98	83.95	443.6
$B \cdot 10^{-28}$ (calc.)	1.424	1.285	1.306	1.559	1.73	3.74	1.83	3.59	6.57	12.81	12.43	80.92	456.3
$D \cdot 10^{-46}$	2.284	1.838	1.816	2.268	4.215	8.743	5.766	13.63	30.33	91.68	133.1	2,051	28,640
$E \cdot 10^{-21}$	+ 5.777	- 0.9593	- 12.53	- 45.87	- 98.16	- 127.5	- 183.3	- 238.4	- 328.2	- 556.0	- 870.7	- 2,146	- 5,635
$F \cdot 10^{-31}$	+ 4.645	+ 3.552	+ 1.761	- 8.284	- 41.96	- 127.5	- 69.38	- 174.0	- 379.4	- 889.5	- 912.8	- 6,629	- 36,610
$L \cdot 10^{-36}$	3.560	6.680	12.87	26.20	42.97	112.8	35.34	66.02	111.1	164.6	106.9	400.0	985.8
$L \cdot 10^{-36}$ (calc.)	3.529	6.468	12.16	23.29	32.51	107.4	28.5	58.9	103.3	152.5	103.0	387.8	1,092
$M \cdot 10^{-54}$	5.191	8.892	16.31	32.40	49.82	134.5	38.44	67.27	107.2	151.8	96.11	307.5	529.8
$N \cdot 10^{-39}$	7.807	13.37	24.53	48.73	74.93	202.3	57.81	101.2	161.2	228.3	144.5	462.5	796.8
$a \cdot 10^{-85}$	- 6.281	- 7.010	+ 15.82	+ 378.9	2.406	18,910	3,000	13,080	45,560	156,000	96,160	2,987,000	42.21 $\cdot 10^6$
$b \cdot 10^{-75}$	- 9.727	+ 38.25	+ 264.4	+ 1,644	5.264	18,510	7,602	17,400	38,640	95,840	10.04 $\cdot 10^4$	94.44 $\cdot 10^4$	63.62 $\cdot 10^6$
$c \cdot 10^{-67}$	- 1.139	+ 9.660	+ 27.06	+ 77.19	204.7	257.2	390.2	908.4	1,821	6,412	45,243	32.43 $\cdot 10^4$	85.24 $\cdot 10^6$

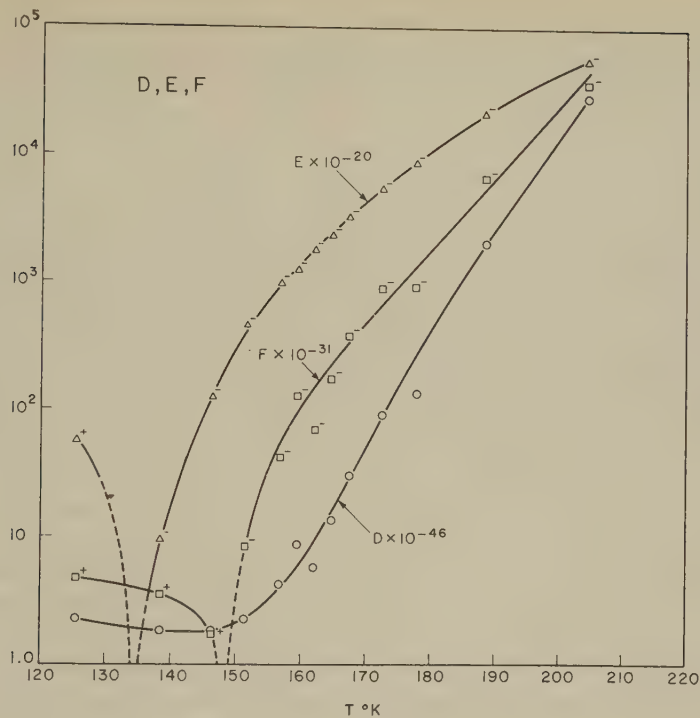


Fig. 6

Parameters  $D$ ,  $E$ , and  $F$  of formulae (2.11) and (2.12) versus temperature

5. Discussion of  $n$ -type InSb

Although we have done no experiments with  $n$ -type material, we shall discuss briefly the properties to be expected from  $n$ -type InSb, when again (3.24) is valid.

$n$ -type semiconductors can be defined by the condition

$$\mathfrak{N} = n_1 + n_2 + n_3 < 0 \tag{5.1}$$

Assuming that above a certain temperature all donors and acceptors are fully ionized, and that the magnetic field has no effect on the  $n_i$ 's, one would again expect  $A_\infty$  to be a constant

$$A_\infty = \frac{1}{e\mathfrak{N}_\infty} \tag{5.2}$$

Considering the ratio  $A_0/A_\infty$  as defined by (4.5) one sees at once that for an  $n$ -type semiconductor with only one kind of electron and satisfying (3.22) and (3.24) one always has

$$0 < \frac{A_0}{A_\infty} \leq 1 \tag{5.3}$$

This result is independent of the number of bands of holes. Again it must be said that this condition may be slightly violated because of the thermal velocity spread, to the extent shown by Wilson<sup>4)</sup>. One could thus replace (5.3) by

$$0 < \frac{A_0}{A_\infty} \leq \frac{3\pi}{8} = 1.18 \quad (5.4)$$

In both inequalities (5.3) and (5.4) the equality sign can only occur at low temperatures.  $A_0$  is negative like  $A_\infty$ , and because of (3.24) never changes sign with temperature; its magnitude will decrease when the temperature increases, unless extremely improbable temperature variations of the mobilities take place.

We shall now look for possible extrema of  $A_H$  versus  $H$ . Again (4.10) will give us (4.11) which we write more simply as (4.12). One can see that  $\alpha$ ,  $\beta$  and  $\epsilon$  are always negative, and as a result there should be no maxima or minima. It must be noted, however, that unlike  $p$ -type InSb for which  $A_H$  can vary over an extremely large range of values, extending from positive values larger than  $A_\infty$  to negative values of a magnitude several times larger than  $A_\infty$ ,  $n$ -type InSb only allows  $A_H$  values in the range given by (5.3) or (5.4). Mobility and charge carrier concentration changes, which are difficult to observe in  $p$ -type InSb because of the large variations of  $A_H$ , may be more readily detected in  $n$ -type InSb. It is therefore particularly interesting that a number of recent experiments with  $n$ -type InSb have shown features which are not as yet wholly understood.

FREDRIKSE and HOSTER<sup>16)</sup> have observed several maxima and minima of the Hall coefficient in  $n$ -type InSb at 78° K and below; they give no explanation of this behaviour. BATE, WILLARDSON and BEER<sup>17)</sup> have also observed a minimum of  $A_H$  versus  $H$  in  $n$ -type InSb at temperatures of 55° K to 195° K, for which they too could give no explanation, although they considered complex scattering mechanisms.

## 6. Computation of the Charge Carrier Concentrations and Mobilities

The system of eight equations (3.13) to (3.20) could first have been reduced to only six independent relations, since there are only six unknowns. However, this seemed too complicated and we tried to obtain a solution from a set of any six equations. The remaining two were then used to check the consistency of the experimental parameters with the theory. The mathematical method which will be described in Appendix I has been chosen because of two important advantages. First of all it is algebraically quite simple. Secondly, it does not make use of  $B$  and  $L$  which are determined from the magnetoresistance measurements. As has been seen in section 2, magnetoresistance is more affected than Hall effect by sample geometry and it is advisable to discard those parameters



which have been derived from the dependence on the magnetic field of the sample resistance. With the computed carrier concentrations one can in turn obtain calculated values of  $B$  and  $L$ . It is interesting to compare these calculated values with those obtained from the experiments (Table II). The agreement is very good and indicates that all the experimental parameters obtained are highly compatible with each other within the theory presented; it is also indicative that the geometrical effect produced only small perturbations.

Table III and Figures 7 to 12 give the computed charge carrier concentrations,  $n_i$ , and the mobilities,  $b_i$ , versus the temperature  $T$ . With the exception of  $n_3$  and  $b_3$  the values obtained appear to be very reasonable, not too scattered, and with a plausible temperature dependence. The values obtained for  $n_3$  and  $b_3$  are reasonable only below  $150^\circ\text{K}$ ; above

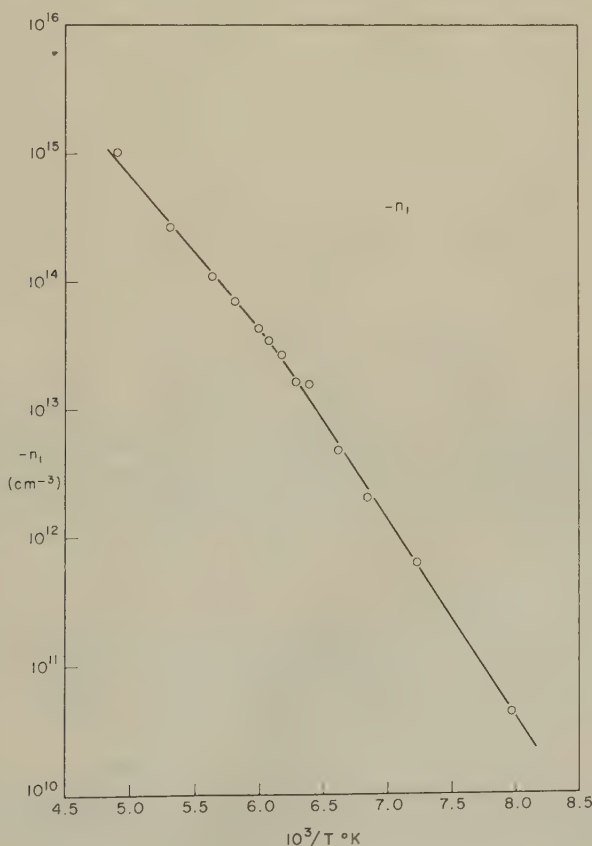


Fig. 7  
Concentration of electrons versus temperature

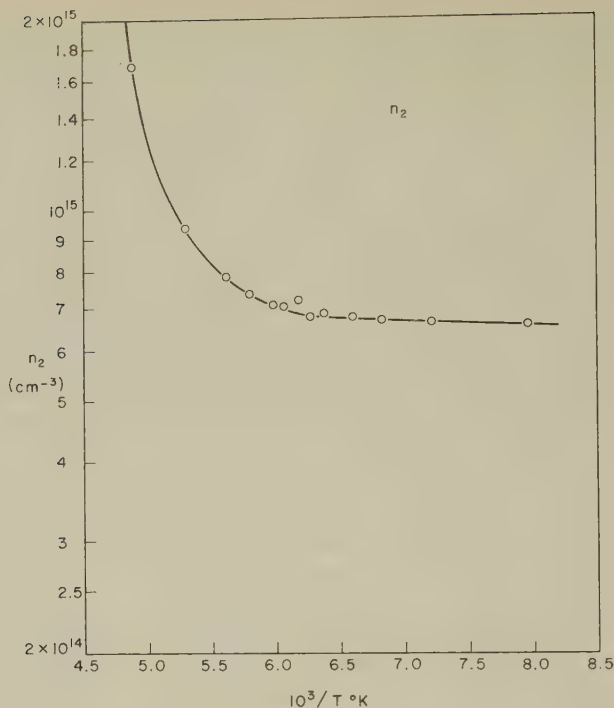


Fig. 8

Concentration of «slow» holes versus temperature

that temperature  $n_3$  becomes negative, while  $b_3$  starts increasing towards rather high values. The negative values of  $n_3$  seem to be a physically impossible result, since by definition (section 3) we would always expect the same signs for  $n_i$  and its corresponding  $b_i$ . The success of our model below 150° K was to be expected, since it is in that temperature range that features most characteristic of a three carrier model appear to be followed by our sample.

Figure 13 is a graph of  $\log [-n_1 (n_2 + n_3)/T^3]$  versus  $1/T$ . Simple activation theories predict this relation to be linear, with a slope yielding the energy gap at the absolute zero. We obtain  $\Delta E = 0.27$  eV, a value slightly higher than the recent quotation of 0.25 eV<sup>18)</sup>.

## 7. Discussion of an Alternative Model

A model consisting of two degenerate bands, one of electrons and one of holes, has proved inadequate to explain the field dependence observed. Only in the narrow range from 150° K to 160° K does it happen that our experimental curves  $A_H$  and  $\varrho_H$  can be represented almost equally well

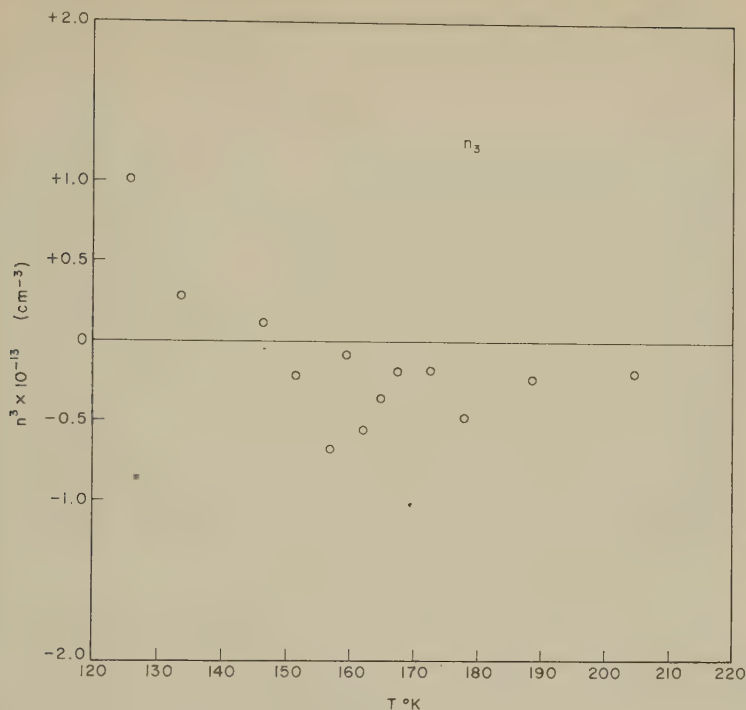


Fig. 9  
Concentration of «fast» holes versus temperature

by a two band model of properties similar to the three-band model discussed so far. To check if taking the thermal spread of velocities and the scattering by ionized impurities into account would improve the situation it is convenient to consider the parameter  $\Lambda$  defined elsewhere<sup>9)13)</sup>. We recall that, under reasonable simplifying conditions,  $\Lambda$  should obey the following relation:

$$\Lambda(H=0) = \left\{ \frac{\Lambda(H=\infty) + (1-\alpha)/(Q-1)}{1 + (1-\gamma)/(Q-1)} \right\} \cdot \frac{\gamma}{\alpha} \quad (7.1)$$

(we refer to reference 9) for the definition of the symbols) and we have erroneously stated<sup>9)</sup> that the following inequality follows:

$$\Lambda(0) \geq \Lambda(\infty) \quad (7.2)$$

(7.2) is correct only when  $\Lambda(\infty)$  satisfies the very restrictive condition (7.3):

$$\Lambda(\infty) \left\{ \frac{Q-1}{Q-\gamma} - \frac{\alpha}{\gamma} \right\} \geq -\frac{1-\alpha}{Q-\gamma} \quad (7.3)$$

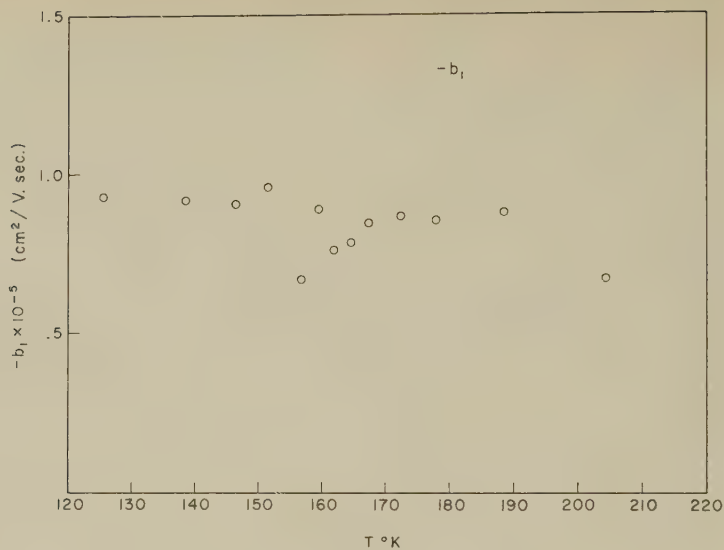


Fig. 10  
Mobility of electrons versus temperature

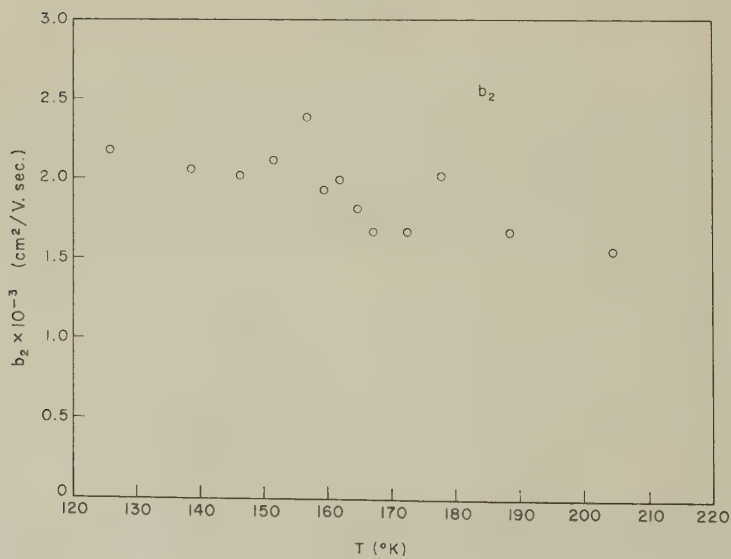


Fig. 11  
Mobility of «slow» holes versus temperature

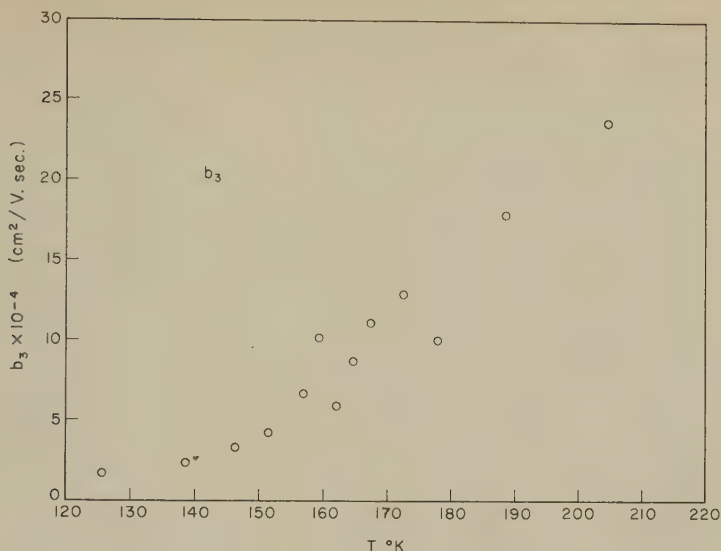


Fig. 12  
Mobility of «fast» holes versus temperature

This condition is not satisfied in *p*-type InSb and it is seen in Figure 14 that one has throughout  $A(0) < A(\infty)$ .

Depending on the degree of degeneracy and on the relative amounts of scattering by lattice waves and ionized impurities  $\alpha$  and  $\gamma$  should be comprised between the following limits<sup>4)</sup>

$$.5 \leq \alpha \leq 1 \quad (7.4)$$

$$2 \gtrsim \gamma \gtrsim 1 \quad (7.5)$$

Now  $Q$ ,  $A(0)$  and  $A(\infty)$  can be derived from our measurements, using functions (3.11) and (3.12), and the parameters of Table II. We know that these calculated functions fit the measurements very well and it can be seen in Figure 14 that the values so obtained are likely extrapolations of the experimental points at finite magnetic fields. Assuming for  $\alpha$  the three values .5; .849; and 1 one can calculate  $\gamma$ . If the  $\gamma$  values obtained satisfy (7.5) we might conclude that our alternative model is valid for *p*-type InSb. As can be seen from Table IV and Figure 15 this does not occur for all temperatures. Below 165°K  $\gamma$  satisfies condition (7.5) and below 160°K all  $\gamma$  values are so closely similar that one would be inclined to accept our alternative model. However, at the higher temperatures this model gives unacceptable results.



Table III

Charge carrier concentrations (in  $\text{cm.}^{-3}$ ) and mobilities (in  $\text{cm.}^2/\text{V. sec.}$ ) as computed at the various temperatures of the measurements

$T^\circ \text{ K}$	125.6	138.5	146.3	151.5	156.8	159.4	162.0	164.7	167.3	172.5	177.8	188.5	204.5
$n_1 \cdot 10^{-13}$	-0.00435	-0.0637	-0.200	-0.472	-1.59	-1.63	-2.68	-3.47	-4.32	-7.01	-11.24	-26.9	-101
$n_2 \cdot 10^{-13}$	+65.44	+66.24	+66.57	+67.5	+68.8	+67.6	+72.0	+70.4	+70.98	+73.7	+78.21	+93.7	+169
$n_3 \cdot 10^{-13}$	+1.06	+0.282	+0.116	-0.217	-0.677	0.0845	-0.551	-0.356	-0.186	-181	-0.474	-0.235	-2.0
$b_1 \cdot 10^{-3}$	-92.77	-91.73	-90.76	-95.85	-66.79	-88.85	-75.99	-78.33	-84.40	-86.80	-85.69	-87.76	-66.84
$b_2 \cdot 10^{-3}$	+2.182	+2.060	+2.020	+2.115	+2.386	+1.932	+1.992	+1.815	+1.666	+1.661	+2.028	+1.685	+1.547
$b_3 \cdot 10^{-3}$	+16.93	+23.73	+33.13	+42.24	+66.62	+101.6	+59.61	+86.74	+110.3	+128.5	+101.15	+178.1	+237.2
$\frac{-n_1(n_2+n_3)}{T^3 \cdot 10^{+20}}$	0.146	1.60	4.25	9.09	27.8	27.2	44.9	54.4	61.9	101	155	376	1,980

Table IV

Parameters of the alternative model

$T^\circ \text{ K}$	125.6	138.5	146.3	151.5	156.8	159.4	162.0	164.7	167.3	172.5	177.8	188.5	204.5
$A^{(0)}$	-7.124	-105.1	-7.351	-2.968	-1.377	-1.052	-8051	-1.080	-8485	-8587	-7173	-4.881	-4.639
$A^{(\infty)}$	-3.095	-37.33	-5.525	-2.428	-1.164	-9188	-5832	-4173	-2891	-1702	-1094	-0.0458	-0.0177
$\gamma (\alpha = 1)$	1.057	1.074	1.050	1.060	1.080	1.073	1.218	1.796	2.091	3.305	4.476	25.0	82.8
$\gamma (\alpha = .849)$	1.074	1.068	1.043	1.056	1.074	1.066	1.209	1.783	2.073	3.284	4.395	24.7	80.4
$\gamma (\alpha = .5)$	1.162	1.041	1.015	1.034	1.048	1.035	1.169	1.728	1.991	3.092	4.056	23.4	71.1

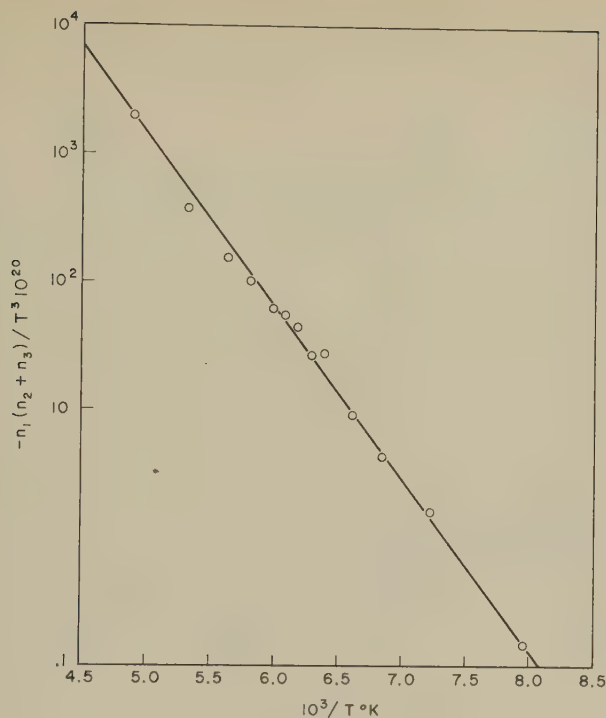


Fig. 13

Graph of  $\log [-n_1(n_2+n_3)]/T^3$  versus  $1/T$ . The straight line has a slope which can be identified with  $-\Delta E/kT$ , yielding for the energy gap  $\Delta E = 0.27$  eV ( $k$  = BOLTZMANN constant)

### 8. Conclusions

The two models considered in this paper appear equally well suited to explain the properties of *p*-type InSb in the extrinsic range, but they both fail in the intrinsic range. In view of a great amount of evidence from other sources the three-band model is more likely to correspond to the facts. The analysis carried out here gives detailed information about the concentrations and mobilities of the different charge carriers. In the intrinsic range EHRENREICH<sup>5)</sup> has shown that the three band model can be maintained provided polar scattering is considered as the dominant mechanism determining the mobility of the electrons.

### 9. Acknowledgements

We wish to express our thanks to Dr. D. K. C. MACDONALD for his unflinching encouragement, to Drs. D. GREIG and J. S. DUGDALE for reading the manuscript, and Mr. ANDREW KORSACK for his assistance with the calculations.

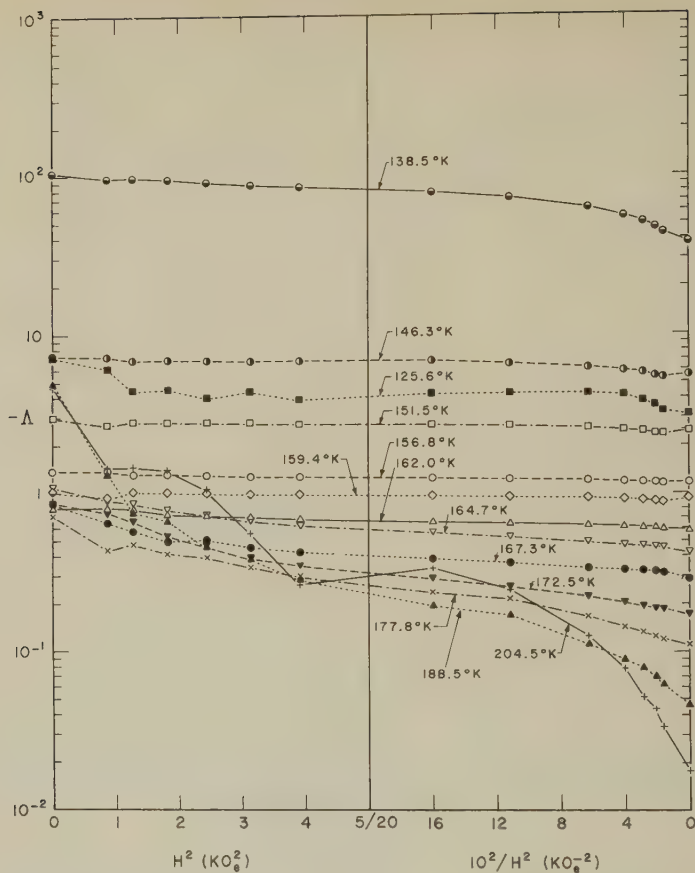


Fig. 14

Field and temperature dependence of the function  $A$  defined by (3.21). The points at  $H = 0$  and  $\infty$  are calculated with the help of Table II; all other points are experimental

### Appendix:

#### Solution of the Equations (2.13) to (2.20)\*

The three mobilities  $b_i$  are obtained as solutions of a cubic equation

$$b^3 - \alpha b^2 + \beta b - \gamma = 0 \quad (\text{A.1})$$

where  $\alpha$ ,  $\beta$  and  $\gamma$  are simple function of the mobilities.

$$\alpha = b_1 + b_2 + b_3 \quad (\text{A.2})$$

\*) The mathematical expressions of this solution have been worked out by Mr. Andrew Korsak, to whom we are very much indebted.

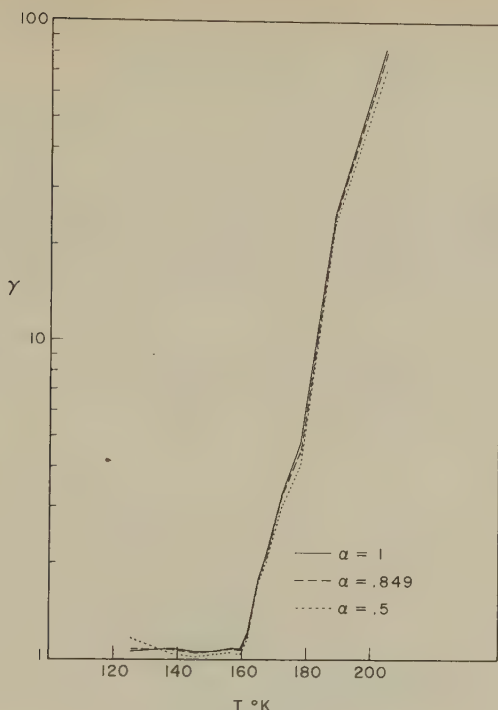


Fig. 15

Temperature dependence of parameter  $\gamma$  discussed in the alternative model  
cf. section 7)

$$\beta = b_1 b_2 + b_2 b_3 + b_3 b_1 \tag{A.3}$$

$$\gamma = b_1 b_2 b_3 \tag{A.4}$$

$\alpha$ ,  $\beta$  and  $\gamma$  can be expressed in terms of the experimental parameters  $A$  to  $N$  appearing in (2.11) and (2.12). Since we have eight non-independent parameters, these expressions are not unique. We shall give here expressions which do not involve  $B$  and  $L$ .

$$\gamma = \frac{N}{\sqrt{M}} \tag{A.5}$$

$$\alpha = \frac{1}{A} \left( E \pm \sqrt{D + 2A\sqrt{M}} \right) \tag{A.6}$$

$$\beta = \frac{F - \gamma A + \alpha \sqrt{M}}{\alpha A - E} \tag{A.7}$$

It is important to note that with our model, and with  $p$ -type InSb,  $\sqrt{M}$  is a negative number – cf. eqs. (2.17) and (2.24). Therefore  $\gamma$  is also

a negative number. It can also be shown that  $\alpha A - E$  is negative at low temperatures and positive at high temperatures; as a result the sign in front of the main root in (A.6) is not known a priori. A diagram of the positive values of this root exhibits a very well defined minimum at about 155°K. This minimum comes close to zero, and since we expect  $\alpha A - E$  to have a slowly changing derivative we assume the change of sign to occur at that temperature. Introducing the values obtained for  $\alpha$ ,  $\beta$  and  $\gamma$  into (A.1) gives an equation which always has a large negative root, attributed to  $b_1$ , and small and large positive roots, attributed to  $b_2$  and  $b_3$  respectively.

The charge carrier concentrations,  $n_i$ , can easily be expressed in terms of the mobilities,  $b_i$ , when solving the following set of equations:

$$n_1 + n_2 + n_3 = \frac{M}{N} \quad (\text{A.8})$$

$$n_1 b_1 + n_2 b_2 + n_3 b_3 = A \quad (\text{A.9})$$

$$n_1 b_1^2 + n_2 b_2^2 + n_3 b_3^2 = E \quad (\text{A.10})$$

and the solution is

$$n_1 = \frac{E - A(b_2 + b_3) + \frac{M}{N} b_2 b_3}{(b_1 - b_2)(b_1 - b_3)} \quad (\text{A.11})$$

with similar formulae for  $n_2$  and  $n_3$ .

### References

- 1) G. DRESSELHAUS, A. F. KIP, C. KITTEL, and G. WAGONER, Phys. Rev. 98, 556 (1955).
- 2) H. P. R. FREDERIKSE and W. R. HOSLER, Phys. Rev. 108, 1146 (1957).
- 3) E. O. KANE, J. Phys. Chem. Solids 7, 249 (1957).
- 4) A. H. WILSON, The Theory of Metals, 2nd edition. Cambridge University Press (1953), p. 235.
- 5) H. EHRENREICH, J. Phys. Chem. Solids 2, 131 (1957); 9, 129 (1959).
- 6) R. K. WILLARDSON, T. C. HARMAN, and A. C. BEER, Phys. Rev. 96, 1512 (1954).
- 7) A. C. BEER, J. Phys. Chem. Solids 8, 507 (1959).
- 8) A. C. BEER and R. K. WILLARDSON, Phys. Rev. 110, 1286 (1958).
- 9) G. FISCHER and D. K. C. MACDONALD, Can. J. Phys. 36, 527 (1958).
- 10) H. J. LIPPMAN and F. KUERT, Z. Naturforschung 13a, 462 and 474 (1958).
- 11) C. HERRING, to be published, cf. ref. 15), p. 1138.
- 12) R. C. CHAMBERS, Proc. Phys. Soc. (London) A 65, 903 (1952).
- 13) G. FISCHER and D. K. C. MACDONALD, Phil. Mag. 2, 1393 (1957).
- 14) H. J. HROSTOWSKI, F. J. MORIN, T. H. GEBALLE, and G. H. WHEATLEY, Phys. Rev. 100, 1672 (1955).
- 15) D. J. HOWARTH, R. H. JONES, and E. H. PUTLEY, Proc. Phys. Soc. (London), B 70, 124 (1957).
- 16) H. P. R. FREDERIKSE and W. R. HOSLER, Phys. Rev. 108, 1136 (1957).
- 17) R. T. BATE, R. K. WILLARDSON, and A. C. BEER, J. Phys. Chem. Solids 9, 119 (1959).
- 18) O. G. FOLBERT, Z. Naturforschung 13a, 856 (1958).



## Compte rendu de la Réunion de la Société Suisse de Physique

à Winterthur les 7 et 8 mai 1960

Président: Prof. Dr H. STAUB (Zurich)

Secrétaires: Prof. Dr J. ACKERET (Zurich)

Prof. Dr B. VITTOZ (Lausanne)

### *Partie administrative*

En l'absence du président et du vice-président de la Société, cette séance est présidée par Prof. J. ROSSEL.

Sont reçus comme membres ordinaires: MM. H. BILGER (Inzlingen, Allemagne), L. CHOLLET (Neuchâtel), H. CHRIST (Bâle), A. DE HALLER (Zurich), C. POPPELBAUM (Dornach), H. WINKLER (Zurich).

Les comptes annuels et le rapport des vérificateurs sont donnés puis acceptés.

Prof. M. FIERZ, rédacteur des Helvetica Physica Acta, expose son rapport sur la situation de notre périodique.

Prof. P. HUBER, président du Comité National Suisse de Physique, donne également communication de son rapport annuel.

Suivant le vœu du président, le professeur F. HOUTERMANS rappelle les mérites du professeur Dr GREINACHER qui vient de fêter le 31 mai 1960 son 80<sup>e</sup> anniversaire, et qui fut président de la Société Suisse de Physique. A cette occasion, les vœux les plus chaleureux lui sont exprimés par l'assemblée au nom de la Société Suisse de Physique.

### *Partie scientifique*

Dix communications du domaine de la physique appliquée paraissent dans «Zeitschrift für angewandte Mathematik und Physik (ZAMP)».



*Prof. Dr. H. Greinacher pour son 80<sup>e</sup> anniversaire*

## Méthode de mesures du pouvoir thermoélectrique intrinsèque (sans conducteur de référence)

par ALBERT PERRIER, Lausanne

I. *Le problème et le principe de sa solution.* – Dans l'expression de la force électromotrice d'un couple thermoélectrique

$$E = E_A + E_B + \Delta V_t^{t+\Delta t}$$

les composantes  $E_A$  et  $E_B$  sont fonctions exclusivement de la différence des températures et de la *nature* de chaque conducteur, elles sont «intrinsèques»<sup>\*)</sup>. Et cependant leur détermination a toujours été basée sur la mesure de fem. de *couples*, c'est-à-dire s'est toujours appuyée sur un *conducteur de référence* (usuellement Pb), en faisant appel à la formule thermodynamique classique de Lord Kelvin. L'auteur propose ici une *méthode qui libère complètement de cette sujétion* et par conséquent des hypothèses qu'elle implique (voir toutefois réserve in fine).

En bref, cette voie nouvelle se fonde sur la *mesure de l'altération de l'effet magnétothermoélectrique «longitudinal» liée à l'effet transversal sans d'ailleurs exiger la connaissance de ce dernier.*

Maintenons un gradient *thermique fixe* parallèlement à la plus grande dimension (dir.  $ox$ ) d'une lame conductrice rectangulaire. La force électromotrice qui s'y établit a été interprétée par l'auteur comme *résultant de l'équilibre entre un «autocourant thermoélectrique»*  $I_{th}$  (existant en l'absence de champ électrique et ne correspondant à aucune transformation d'énergie) et un *courant égal et de sens inverse entretenu par un champ électrique*  $E_{th} = -\text{grad } V_{th}$ .

Ce qui s'exprime localement par

$$J_{th} + E_{th}/\varrho = 0 \tag{1}$$

Appliquons un champ magnétique  $H$  normal à la lame. Il se manifeste une fem.  $E_y$  (normale à la fois à  $H$  et au grad $t$ : effet v. Ettingshausen-Nernst) et une variation  $\delta E_x$  de la fem. longitudinale. Si l'on court-circuite «transversalement» la lame par un empilement de conducteurs de résistance négligeable (reliant les arêtes parallèles à  $ox$ ), la tension  $E_y$  s'évanouit et l'effet se ramène à une nappe de courant de densité  $J_y$ . Nous caractérisons brièvement le premier mode d'expérience par l'indice  $o$  «ouvert», phénomène: tension sans courant), le second par («fermé»: courant sans tension); cette description est classique. Dans l'hypothèse rappelée ci-dessus, le phénomène essentiel devient d'une part une modification «longitudinale»  $\delta J_{thx}$  de l'autocourant, de l'autre l'apparition d'une com-

<sup>\*)</sup> Nous préférons ce qualificatif à celui d'«absolu», souvent employé, comme aussi à «spécifique» qui peut prêter à confusion.

posante «transversale»  $J_{th}$ ; on doit de plus tenir compte de ce que simultanément la résistivité est changée («magnétorésistance»  $\delta\rho$ ).

Considérons les effets longitudinaux ( $\alpha$ ), écrivons les équations d'équilibre dans les conditions  $f$  et  $o$  (applications de l'équation (1))

$$(J_{th} + \delta J_{th}) (\varrho + \delta\varrho_f) = - (E_{th} + \delta E_{thf}) \quad (2)$$

$$(J_{th} + \delta J_{th}) (\varrho + \delta\varrho_o) = - (E_{th} + \delta E_{tho} + \delta E_{tho}) \quad (3)$$

Retranchons (3) de (2)

$$(J_{th} + \delta J_{th}) (\delta\varrho_f - \delta\varrho_o) = - (\delta E_{thf} - \delta E_{tho}) \quad (4)$$

ou

$$(J_{th} + \delta J_{th}) = - \frac{\delta E_{thf} - \delta E_{tho}}{\delta\varrho_f - \delta\varrho_o} \quad (5)$$

Ce qui nous apporte la solution, remarquablement simple, de notre problème expérimental.

L'obstacle en effet qui s'est toujours opposé jusqu'ici à la mesure directe du potentiel thermoelectrique, à savoir le *potentiel intrinsèque des sondes elles-mêmes* est ici éliminé; car il est parfaitement possible, moyennant précautions appropriées, de déterminer sans ambiguïté la *variation magnétogalvanique dans les lames*.

Nous allons arriver au même résultat, particulièrement important par une voie plus générale; moins brève, elle gagne en force persuasive.

Superposons au gradient thermique un courant entretenu par une source extérieure réglable (densité  $f$ ). A son aide, nous relevons des *caractéristiques*  $E = f(J)$  dont les équations sont

$$[J - (J_{th} + \delta J_{th})] [\varrho + \delta\varrho_f] = E + \delta E_f \quad (6)$$

$$[J - (J_{th} + \delta J_{th})] [\varrho + \delta\varrho_o] = E + \delta E_o \quad (7)$$

$$[J - (J_{th} + \delta J_{th})] [\delta\varrho_f - \delta\varrho_o] = \delta E_f - \delta E_o \quad (7)-(6)$$

d'où l'on conclut que

$$J = J_{th} + \delta J_{th} \text{ pour } \delta E_f = \delta E_o \quad (8)$$

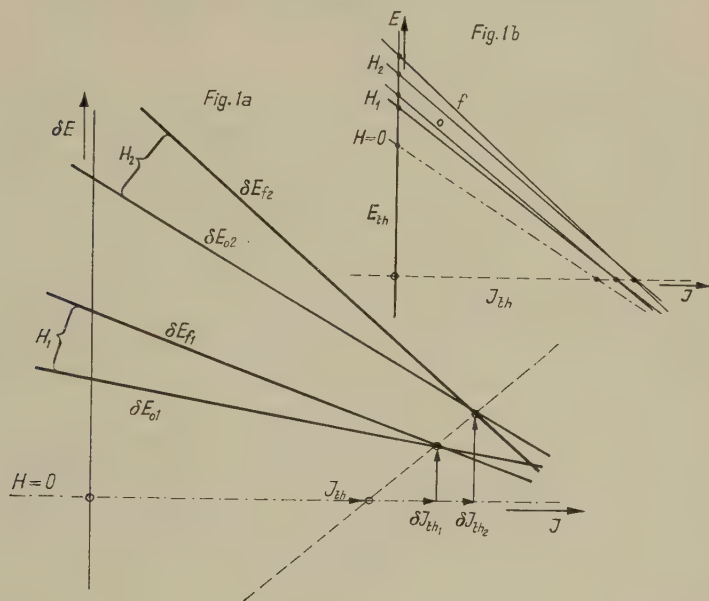
En langage parlé: *La densité de l'autocourant thermoelectrique est donnée par l'abscisse du point de concours des caractéristiques de la variation magnétogalvanique de la tension observée en conditions  $f$  et  $o$ .*

On vérifiera aisément que les équations (5) et (8) se déduisent l'une de l'autre.

Les figures 1a et 1b illustrent l'ensemble de ces considérations: 1b est plus complète en ce sens qu'elle est construite avec la caractéristique fondamentale (champ nul, inobservable, mais tirée après coup des expériences ci-dessus). Elle rend immédiatement évidentes sous la condition (8)

$$(9 \ E = \delta E_f = \delta E_o = \delta E \quad \text{et} \quad \delta J_{th} = \delta E / \varrho) \quad (10)$$

Il convient maintenant de relever qu'à *chaque valeur de l'aimantation correspond une paire de caractéristiques*, corrélativement une paire de valeurs de  $J_{th} + \delta J_{th}$  et une de valeurs de  $E_{th} + \delta E_{th}$ . Les valeurs fonda-



mentales  $J_{th}$  et  $E_{th}$  (pour  $H = 0$ ,  $\delta J_{th} = 0$ ) s'obtiennent immédiatement par une extrapolation linéaire (relations 9 et 10).

II. *Mise en œuvre.* Elle semble bien n'offrir aucune difficulté majeure; reposant sur la mesure de petites différences, elle demandera toutefois beaucoup d'attention. Une évaluation basée sur des données existantes, conduit à des différences ( $\delta E_f - \delta E_o$ ) de l'ordre de quelques  $\mu V$  pour des ferromagnétiques à saturation, de la dizaine de  $\mu V$  pour du Bi sous quelque 6000 Oe, avec les conducteurs à réactions plus faibles, des champs magnétiques plus intenses ramèneront à des ordres de grandeur comparables (dépendances quadratiques). Quant aux différences de résistances, nous avons montré autrefois que

$$\varrho_f - \varrho_o = \varrho_o \operatorname{tg}^2 \varphi$$

$$\text{où} \quad \operatorname{tg} \varphi = R/\varrho \quad R = \text{constante de Hall}$$

*Simplification de la technique opératoire.* — La méthode requiert en apparence deux éprouvettes d'essai, l'une étant munie de courts-circuits transversaux. Or, on peut en réalité se dispenser de l'autre par l'application adéquate que voici du dispositif à courts-circuits décrit dans une publica-



tion antérieure<sup>1)</sup>: après une série de mesures sur *la lame disposée normalement au champ* ( $f$ ), on l'installera dans une nouvelle position à  $90^\circ$  de la première et on répètera une série semblable. Il est manifeste qu'alors il ne se développe pas de courants transversaux et *les mêmes sondes* indiqueront cette fois  $\delta E_0$ .

*Sur la nature des fermetures transversales.* — Leur caractère essentiel est une *résistance négligeable*. Il ne paraît pas indispensable au surplus qu'elles soient homogènes avec l'éprouvette: *on peut les choisir simplement d'un métal très conducteur (cuivre)*, ce qui peut faciliter notablement la construction (épaisseurs!).

On se rend compte aisément que l'effet Leduc et les fem. consécutives de l'effet Peltier seront négligeables.

Pour cette même raison de la non-nécessité de connaître des effets transversaux, il n'est *pas indispensable de choisir une lame large*, et de plus, grâce aux courts-circuits transversaux, *la déformation des lignes de champs* au voisinage des électrodes n'est pas à redouter.

La longueur des éprouvettes peut ainsi être choisie librement en fonction de la sensibilité de l'observation seulement. Pour la brièveté et la clarté de l'exposé, il n'a été fait que la très courte allusion ci-dessus à des effets thermiques, nécessairement superposés en condition  $o$ . Les caractéristiques par exemple pourraient subir une légère courbure du fait du gradient  $oy$  de l'effet Leduc-Righi. Nous discuterons dans une publication plus détaillée de l'élimination de telles causes d'incertitude, en fait minimales.

III. *Des conséquences à espérer de séries d'expériences.* — Notons en premier lieu que des expériences effectuées par cette méthode donnent comme résultats supplémentaires *les variations magnétiques du pouvoir thermoélectrique* (soit ce que l'on désigne communément par *forces thermo-électromotrices d'aimantation*) ainsi que les *magnétorésistances*. Mais leur importance générale est d'un ordre notablement élevé. En premier lieu, la connaissance exacte des potentiels thermoélectriques intrinsèques implique immédiatement, par l'intermédiaire des fem. de couples, celle des *fonctions thermiques des potentiels de contact*, et comme conséquence les liaisons expérimentales réelles de ces grandeurs avec les coefficients des effets Peltier et Thomson; puis vraisemblablement un éclaircissement de l'énigme des *flux d'énergie accompagnant les courants électriques* (cf. effet Bridgman dans métaux non cubiques) et cela dans les métaux comme les semi-conducteurs.

A vues plus lointaines, on pourra entreprendre des séries de recherches sur les effets von Ettingshausen-Nernst et Leduc-Righi *purs* (afférents aux autocourants, c'est-à-dire commandés par des gradt exclusivement, en l'absence de tout grad V). Je reviendrai ultérieurement sur ces ques-

tions qui touchent à des transports d'électricité et de chaleur *sans dégradation d'énergie*.

Il importe toutefois de relever que les déductions résumées ici sont liées étroitement au mécanisme dualiste de la thermoélectricité, lequel choisit pour grandeur de base l'*autocourant thermoélectrique* (défini en l'absence de champ électrique), alors que les descriptions traditionnelles partent de la *force électromotrice* (mesurée en l'absence de courant). La différence se marque alors nettement par le fait que dans ce dernier cas la magnéto-résistance n'entre pas *en ligne de compte à courant nul*. Les caractéristiques ne sont pas identiques mais demeurent parallèles; la différence entre les régimes *a* et *f* se manifeste alors en particulier à partir du champ électrique longitudinal compensé.

Or cela implique cette prévision très intéressante: Alors que nombre de phénomènes peuvent s'interpréter indifféremment dans les deux modes rappelés<sup>2)</sup>, des expériences par *la voie magnétogalvanique proposée doivent permettre de trancher entre les deux*.

#### Bibliographie

- 1) A.-L. PERRIER, Méthode de fermetures multiples pour les mesures magnétogalvaniques transversales. *Helv. Phys. Acta* 32, 451 (1959).
- 2) A. PERRIER, Autocourants et forces électromotrices; de l'interchangeabilité de ces notions, *Helv. Phys. Acta* 28, 481 (1955).

### Séparation expérimentale des pouvoirs thermoélectriques intrinsèques et des potentiels de contact

A. PERRIER, Lausanne

Cette communication paraîtra plus tard

### Elektrische Quadrupolwechselwirkungen in einigen Feldspäten

VON E. BRUN\*), ST. HAFNER\*\*) und P. HARTMANN\*)

In einer früheren Arbeit<sup>1)</sup> wurde auf Grund von Quadrupoleffekten in magnetischen Kernresonanzspektren gezeigt, dass Albit ( $\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$ ; triklin) eine geordnete Al-Verteilung aufweist, während dies für Sanidin ( $\text{KAlSi}_3\text{O}_8$ ; monoklin) und Analbit (Hochtemperaturmodifikation von Albit) nicht zutrifft.

\*) Physik-Institut der Universität Zürich.

\*\*) Institut für Kristallographie und Petrographie der ETH, Zürich.

Für einen Albit-Einkristall wurde nun die Untersuchung auf eine Messung der innern elektrischen Felder ausgedehnt. Der Methode von VOLKOFF *et al.*<sup>2)</sup> folgend wurde die Orientierungsabhängigkeit der Quadrupolaufspaltung der  $\text{Al}^{27}$ - und  $\text{Na}^{23}$ -Linie ausgemessen und daraus die Tensoren  $\nabla E$  am Ort der beiden Kerne berechnet. Unter Verwendung der bekannten Werte der Quadrupolmomente ( $Q_{\text{Al}} = 0,149 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$ ;  $Q_{\text{Na}} = 0,1 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$ ) ergaben sie im Hauptaxensystem

$$\begin{array}{ll} V_{XX} = -1,72 & V_{XX} = -4,05 \\ \text{für Al: } V_{YY} = -7,65 & \text{für Na: } V_{YY} = -6,75 \\ V_{ZZ} = 9,36 & V_{ZZ} = 10,8 \end{array}$$

jeweils in Einheiten von  $10^{16} \text{ Volt/cm}^2$ . Bis jetzt ist es uns noch nicht gelungen, die Richtungen der Tensor-Hauptaxen ( $X, Y, Z$ ) mit dem Kristallbau in Zusammenhang zu bringen. Der Asymmetrieparameter ergab mit obigen Werten für Al:  $(V_{XX} - V_{YY})/V_{ZZ} = 0,634$ , für Na: 0,250. Die Bestimmung der Quadrupolkopplungskonstanten führte zu folgenden Resultaten:

$$\begin{array}{l} \text{Al: } eQV_{ZZ}/h = 3,37 \pm 0,03 \text{ Megahertz} \\ \text{Na: } eQV_{ZZ}/h = 2,62 \pm 0,03 \text{ Megahertz} \end{array}$$

#### Literatur

- 1) BRUN, HAFNER, HARTMANN und LAVES, *Z. Krist.* 113, 65 (1960).
- 2) VOLKOFF, PETCH and SMELLIE, *Canad. J. of Phys.* 30, 270 (1952).

### Quadrupolwechselwirkungsenergie von $\text{Al}^{27}$ im Spinell ( $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ )

von E. BRUN\*), ST. HAFNER\*\*) und P. HARTMANN\*)

Im Spinell ( $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ ) stehen den Kationen  $\text{Mg}^{+2}$  und  $\text{Al}^{+3}$  tetraedrische und oktaedrische Zwischenräume der kubisch nahezu dichtesten Anionenpackung zur Verfügung. Die elektrischen Quadrupoleffekte im Kernresonanzspektrum von  $\text{Al}^{27}$  eines natürlichen Spinells führten zum Resultat, dass die  $\text{Al}^{+3}$ -Ionen des betreffenden Kristalls vorwiegend oktaedrische Lücken mit rhomboedrischer Punktsymmetrie ( $D_{3d}$ ) besetzen. Die Quadrupolkopplungskonstante wurde zu

$$\frac{eQV_{ZZ}}{h} = 3,72 \pm 0,04 \text{ Megahertz}$$

bestimmt. Mit dem bekannten Wert des Quadrupolmoments von  $\text{Al}^{27}$   $Q = 0,149 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$  berechnet sich der Feldgradient des kristall-elek-

\*) Physik-Institut der Universität Zürich.

\*\*) Institut für Kristallographie und Petrographie der E. T. H., Zürich.

trischen Feldes in Richtung der Symmetrieachse zu  $V_{zz} = 10,3 \times 10^{+16}$  Volt/cm<sup>2</sup>. Unter Benützung der neuesten kristallographischen Daten<sup>1)</sup> für den natürlichen Spinell  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ , wurde in analoger Weise wie für den Korund ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) durch BERSOHN<sup>2)</sup>, der Feldgradient am Kernort zu  $V_{zz} = 2,3 \times 10^{+16}$  Volt/cm<sup>2</sup> berechnet.

Eine ausführliche Arbeit wird in der Zeitschrift für Kristallographie erscheinen.

#### *Literatur*

1) H. JAGODZINSKI und H. SAALFELD, *Z. Kristallographie* 111, 197–218 (1958).

2) R. BERSOHN, *J. Chem. Phys.* 29 326–333 (1958).

### **Verbotene $\Delta(M+m) = 0$ Übergänge im paramagnetischen Resonanzspektrum von $\text{Mn}^{IV}$ im $\text{SrTiO}_3$ und $\text{Mn}^{2+}$ im $\text{ZnS}$**

von K. A. MÜLLER

(Battelle Institut, Genf/Schweiz)

Wir haben kürzlich über die quantitative Auswertung<sup>1)</sup> von verbotenen  $\Delta(M+m) = 0$  Übergängen berichtet, die im Resonanzspektrum des vierwertigen Mangans in Einkristallen von  $\text{SrTiO}_3$  beobachtet worden waren<sup>2)</sup>. Die Übergänge erfolgen für ein magnetisches Hochfrequenzfeld, welches parallel zum konstanten Magnetfeld polarisiert ist<sup>3)</sup>. Mit  $M$  beschreiben wir die Elektronenspin- und mit  $m$  die Kernspinquantenzahl.

Für einen Hamiltonoperator der Form

$$\mathcal{H} = g \beta H S + A S I$$

hatten wir für beliebige Werte des Elektronenspins  $S$  und des Kernspins  $I$  das Verhältnis der Intensität  $J_{M,m}^{M+1, m-1}$  der verbotenen Übergänge  $M \leftrightarrow M+1, m \leftrightarrow m-1$ , zur Intensität  $J_{M,m}^{M+1, m}$  der erlaubten Übergänge  $M \leftrightarrow M+1, \Delta m = 0$  errechnet bei gleicher Amplitude des diese Übergänge hervorrufenden Hochfrequenzfeldes. Wir benützten Wellenfunktionen, die mittels erster Ordnung Störungsrechnung ermittelt wurden und erhalten

$$J_{M,m}^{M+1, m-1} / J_{M,m}^{M+1, m} = (I + m) (I - m + 1) \cdot \left( \frac{A'}{H_0} \right)^2 \quad (2)$$

$m$  läuft von  $I$  bis  $-I+1$ ; es bedeuten  $A' = A/g\beta$  die Hyperfeinaufspaltungskonstante in Gauss,  $H_0 = h\nu/g\beta$  das durch den  $g$ -Faktor und die Frequenz  $\nu$  des angelegten Mikrowellenfeldes gegebene Resonanzmagnetfeld bei Abwesenheit der  $IS$ -Koppelung.

Aus Formel (2) ist ersichtlich, dass für einen bestimmten Übergang  $M \leftrightarrow M+1$  sich die Intensitäten der verbotenen Linien untereinander



wie ganze Zahlen, und zwar in unserem Falle des  $Mn^{30}$  mit  $I = 5/2$  wie  $5:5:4:5:5$  verhalten. Für das  $Mn^{55}$  errechnet man mit den Konstanten von  $A' = 15 \pm 1$  Gauss und  $g = 1.994 \pm 0.001^2$ , wenn eine Hochfrequenzstrahlung der Wellenlänge von 3.2 cm im Spektrometer benutzt wird, eine relative Intensität von nur  $2.5^{10}_{-20}$  der äussersten verbotenen und von  $3.7^{10}_{-20}$  der nächst inneren zu den erlaubten Linien. Für den  $M = -1/2 \leftrightarrow +1/2$  Übergang stimmten die beobachteten Werte innerhalb der Fehlergrenze mit den errechneten überein. Die 5 Linien dieses Überganges erfolgen etwa in der Mitte zwischen den 6 erlaubten Linien. Sie waren für sämtliche Magnetfeldrichtungen bezüglich der Kristallachsen sowohl bei Zimmertemperatur als auch bei der Temperatur der flüssigen Luft sichtbar.

Auch die Lage der  $M = m \leftrightarrow 0$  Linien wurde für den Hamiltonoperator (1) mittels Störungsrechnung bis zur zweiten Ordnung errechnet und dann noch, allerdings wegen seiner Kleinheit nur in erster Ordnung, der Term der magnetischen Wechselwirkung  $-\beta_N \beta_N H I$  des Kernmoments mit dem Magnetfeld berücksichtigt. Wir erhielten für die Resonanzmagnetfelder  $H_{\pm \frac{1}{2}, m}^{(2)}$  der verbotenen Übergänge  $M \leftrightarrow M-1$ ,  $m \leftrightarrow m-1$

$$H_{\pm \frac{1}{2}, m}^{(2)} = H_0 - A' m - A' (M+1) - \frac{\beta_N^2}{2H_0} \left\{ I(I+1) + S(S+1) - M^2 - m^2 \pm 4 M m - 3 M + 3 m - 2 \right\} - \frac{\beta_N \beta_N}{g^2} H_0. \quad (3)$$

Hier läuft  $M$  von  $S-1$  bis  $-S$ , und  $m$  von  $I$  bis  $-I+1$ . Aus unserer Formel (3) ist ersichtlich, dass die Elektronenspinquantenzahl  $M$  bereits in erster Ordnung eingeht, und die Linien bei halbbäuhligem Spin  $S$  um etwa  $A'/2$  gegenüber den erlaubten verschoben sind. Im Ausdruck zweiter Ordnung ist ein konstanter Summand  $S(S+1)$  neben einem solchen mit  $I(I+1)$  enthalten. In der Formel für die erlaubten Übergänge die von H. F. ANTON<sup>3</sup> erstmals angegeben wurde, kommt im Gegensatz dazu kein Term vor, in dem  $S$  enthalten ist. Die Beobachtung der verbotenen Übergänge erlaubt somit bei hinreichender Genauigkeit der Magnetfeldmessungen eine direkte Bestimmung des Spins  $S$  einer Resonanz, noch im Falle halbbäuhliger Spins, bei denen alle Übergänge ausser dem  $M = -1/2 \leftrightarrow +1/2$  ausgeschwächt sind. Für einen solchen Übergang reduziert sich unsere Formel zu

$$H_{-1/2, m}^{(2)} = H_0 - A' m - \frac{A'^2}{2} - \frac{A'^2}{2H_0} \left\{ I(I+1) + S(S+1) - m^2 + m - \frac{3}{4} \right\}, \quad (4)$$

$m$  läuft auch hier von  $I$  bis  $-I+1$ .



Die mit Formel (4) errechneten Linienpositionen stimmten für den Fall des Mangans im  $\text{SrTiO}_3$  für einen Spin  $S = 3/2$  innerhalb der Fehlergrenze mit den beobachteten überein. Für einen Spin  $S = 5/2$  wie ihn das  $\text{Mn}^{2+}$  besitzt, wurde dagegen eine Abweichung der theoretisch berechneten Positionen von den beobachteten gegen tiefere Magnetfelder festgestellt, deren Gesamtsumme über alle 5 Linien etwa 20 Gauss ergab bei einem mittleren Gesamtfehler von 5 Gauss (1 Gauss pro Linie). Durch Bestimmung des effektiven Spins  $S$  zu  $3/2$  war es uns beim  $\text{SrTiO}_3$  gelungen zu zeigen, dass wir wirklich die Resonanz vom  $\text{Mn}^{\text{IV}}$  beobachtet hatten!

Um die Verwendbarkeit der Methode im Weiteren, und zwar bei polikristallinen Proben zu prüfen, haben wir uns für das bekannte Beispiel des  $\text{Mn}^{2+}$  im kubischen  $\text{ZnS}$  entschlossen. Das zweiwertige Mangan ist hier auf den  $\text{Zn}^{2+}$  Gitterplätzen eingebaut, welche tetraedrisch von negativen zweiwertigen Schwefelionen umgeben sind. Es besitzt einen  $^6S_{5/2}$ -Grundzustand. Durch Wirkung des kubischen Kristallfeldes auf die höher gelegenen Energieniveaus kommt wegen der Spin-Bahn- und Spin-Spinkoppelung eine Aufspaltung des sechsfach entarteten Grundzustandes des freien Ions in ein höher gelegenes Quartett und ein tiefer gelegenes Dublett zustande<sup>5)</sup>. Der Abstand  $3a$  zwischen diesen beiden Niveaus wurde von MATARRESE und KIKUCHI<sup>6)</sup> und dessen richtiges Vorzeichen von WATKINS<sup>7)</sup> zu  $+ 25,0 \pm 0,2$  Gauss aus Messungen an Einkristallen bestimmt. Wegen dieser Starkaufspaltung wird im paramagnetischen Resonanzspektrum eine Feinstruktur beobachtet, die vom Winkel des konstanten Magnetfeldes zu den Kristallachsen abhängt. Sie ist hier allerdings kleiner als die Hyperfeinaufspaltung, deren Konstante  $A'$  zu  $68,4 \pm 0,1$  angegeben wurde; der  $g$ -Faktor beträgt  $2,0025 \pm 0,0002$ <sup>6)</sup> 7). Die Feinstruktur geht für die  $M = \pm 3/2 \leftrightarrow \pm 5/2$  und die  $M = \pm 1/2 \leftrightarrow \pm 3/2$  Linien in erster Ordnung, aber für die  $M = -1/2 \leftrightarrow +1/2$  Linie nur sehr schwach in zweiter Ordnung ein<sup>8)</sup>. Verwendet man nun Pulverproben und nimmt das Spektrum mit kleiner Zeeman-Modulationsamplitude auf, so werden praktisch nur die Linien des  $-1/2 \leftrightarrow +1/2$  Übergangs registriert, da die andern wegen ihrer Winkelabhängigkeit zu stark verbreitert sind. Diese Ausschmierung ist auch der Grund, dass wir seinerzeit an Pulverproben keine dem  $2^{\text{te}}$ -Ordnungsterm  $m(2M - 1)$  entsprechende Linienverbreiterung der erlaubten Übergänge beobachteten<sup>9)</sup>. Die in unserem Experiment verwendete Probe war eine der damals hergestellten; sie enthielt Mangan in einem Konzentrationsverhältnis  $f = 10^{-4}$ .

Die für ein nahezu parallel zum konstanten Magnetfeld polarisierte Hochfrequenzstrahlung bei Zimmertemperatur und 9100 MHz beobachteten Nulldurchgänge der 5 verbotenen Linien des Übergangs

$M = -1/2 \leftrightarrow +1/2$  sind zusammen mit den theoretisch nach Formel (4) errechneten Linienpositionen in Tabelle 1 eingetragen. Der Berechnung wurde ein Spin  $S = 5/2$  und die weiter oben angegebenen Konstanten zugrunde gelegt. Auch die Differenzen zwischen den experimentellen und

Tabelle 1

Verbotene  $\Delta(M+m) = 0$  Übergänge im paramagnetischen Resonanzspektrum des  $\text{Mn}^{+2}$  in kubischem ZnS-Pulver bei  $300^\circ\text{K}$  und  $9100\text{ MHz}$ ; aufgenommen für ein zum konstanten Magnetfeld paralleles Hochfrequenzfeld

$\Delta m$	Theoretische Werte für $M = -1/2 \leftrightarrow +1/2$ $A = 68,4\text{ gauss}$ ; $g = 2,0025$	Experiment. Werte interpoliert und gemittelt aus 3 Aufnahmen	$\delta H\text{ gauss}$
$-5/2 \leftrightarrow -3/2$	3099,2	3101,4	+ 1,2
$-3/2 \leftrightarrow -1/2$	3165,4	3166,5	+ 1,1
$-1/2 \leftrightarrow +1/2$	3233,1	3233,3	+ 0,2
$+1/2 \leftrightarrow +3/2$	3202,2	3202,2	$\pm 0$
$+3/2 \leftrightarrow +5/2$	3372,8	3372,4	- 0,4

theoretischen Werten sind angegeben, deren grösster 1,2 Gauss beträgt. Die Abweichungen sind übrigens systematisch und könnten vom Messverfahren herrühren. Wir haben die Resonanzmagnetfelder der verbotenen Linien linear zwischen den erlaubten interpoliert. Letztere wurden bis zur zweiten Ordnung mit der üblichen Formel<sup>4) 9)</sup> errechnet. Bei der Aufnahme der Resonanz mit der ZnS-Probe wurde der Magnetstrom linear mit der Zeit verändert. Es ist möglich, dass das Magnetfeld dieser Veränderung wegen der etwas hohen Aufnahmegeschwindigkeit nicht ganz gefolgt ist. Aus der Tabelle geht aber deutlich hervor, dass es selbst ohne Verwendung einer Kernresonanz-Magnetfeldmessapparatur gelingt, den Spin  $S$  eindeutig zu  $5/2$  festzulegen: erstens muss es sich um einen halbzahligen Spin handeln, da sich die Linien etwa in der Mitte zwischen den erlaubten befinden und zweitens würde schon ein um eins grösserer oder kleinerer Spin,  $3/2$  oder  $7/2$ , eine Verschiebung jeder einzelnen Linie nach Formel (4) um 3,6 Gauss ergeben, was 3mal grösser als die grösste gefundene Abweichung ist. Die Sicherheit wird noch erhöht, wenn man die Gesamtabweichung der 5 errechneten zu den gemessenen Linien betrachtet. Sie beträgt nur 2,1 Gauss, während sie bei einem von  $5/2$  abweichenden Spin um mindestens 18 Gauss verschieden sein müsste.

*Literatur*

- 1) K. A. MÜLLER erscheint im Bericht der Tagung über Hochfrequenzspektroskopie vom 31. 3.–2. 4. 1960 in Leipzig.
- 2) K. A. MÜLLER, *Phys. Rev. Letters* 2, 341 (1959).
- 3) W. A. ANDERSON und L. H. PIETTE, *J. Chem. Phys.* 30, 591 (1959).
- 4) B. BLEANEY, *Physica* 17, 175 (1951).
- 5) H. WATANABE, *Progr. Theor. Phys. Japan* 18, 405 (1957).
- 6) L. M. MATARRESE und C. KIKUCHI, *J. Phys. Chem. Solids* 7, 117 (1956).
- 7) G. D. WATKINS, *Phys. Rev.* 110, 986 (1958).
- 8) K. A. MÜLLER, *Helv. Phys. Acta* 31, 173 (1958).
- 9) K. A. MÜLLER, *Helv. Phys. Acta* 28, 450 (1955).

**Etude expérimentale du polaron**

par L. CHOLLET et J. ROSSEL

(Institut de Physique, Université de Neuchâtel)

Un compte rendu détaillé de ce travail sera publié prochainement dans *Helv. Phys. Acta*.

**Effect of Pile Irradiation on the Dielectric Properties of Triglycine Sulfate Single Crystals**

by ENNIO FATUZZO

(Laboratories RCA Ltd., Zurich)

A number of experiments about radiation damage in ferroelectrics by pile irradiation have been reported.  $\text{BaTiO}_3$  was investigated by LEFKOWITZ<sup>1)</sup>, WITTELS and SHEVRIL<sup>2)</sup> and by LEFKOWITZ and MITSUI<sup>3)</sup>; Rochelle Salt by KRUEGER<sup>4)</sup> and SHELUDOV *et al.*<sup>5)</sup>. The main effect of pile irradiation on the hysteresis loop of  $\text{BaTiO}_3$  is a decrease in the coercive field, with no bias effects<sup>4)</sup>. CHYNOWETH<sup>6)</sup> has studied the effect of X-rays and electrons on Triglycine Sulfate (TGS) and observed a pronounced change in the hysteresis loop, which manifested itself in a strong bias.

In this short paper we would like to report on some results we obtained on TGS when this was exposed to pile irradiation. The samples were plates of Triglycine Sulfate, cleaved perpendicular to the ferroelectric direction and ground with abrasive powder to the desired thickness of about 0.2 mm. Transparent gold electrodes were evaporated onto the crystals.

The crystals were exposed to pile radiation at the Würenlingen reactor and the hysteresis loops were then studied as a function of irradiation.

It was found that after irradiation the hysteresis loops were very much deformed: the polarization  $P_s$  had dropped, the coercive field  $E_c$  had increased and an intrinsic bias  $B$  had developed (Fig. 1). Figure 2 shows the fractional decrease of the spontaneous polarization  $P_s$  with increasing integrated neutron flux  $\phi$ ; Figure 3 shows the coercive field strength  $E_c$

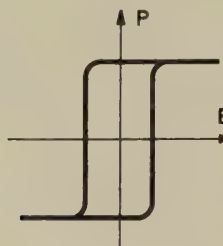


Fig. 1 a

Hysteresis loop before irradiation

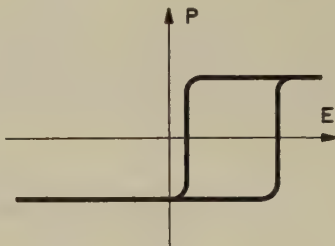


Fig. 1 b

Hysteresis loop after irradiation

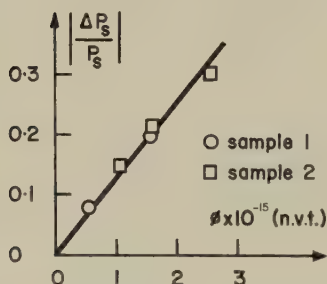


Fig. 2

Absolute value of the fractional decrease  $\Delta P_s / P_s$  in spontaneous polarization versus integrated neutron flux  $\phi$

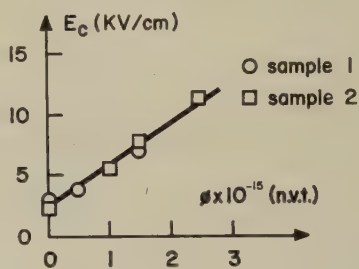


Fig. 3

Coercive field  $E_c$  versus integrated neutron flux  $\phi$

versus  $\phi$  and Figure 4 the electrical bias field strength  $B$  versus  $\phi$ . All three quantities vary linearly with the integrated neutron flux. The points on all the graphs were obtained from two samples, the results are quite reproducible.

When the crystal is irradiated with more than  $3 \times 10^{15}$  n. v. t., the loop starts deteriorating, becoming less and less square, until it «closes» and becomes finally a straight line. By irradiating with more than  $5 \times 10^{15}$  n. v. t., the hysteresis loop and all ferroelectric properties get completely lost.

The bias produced by irradiation disappears upon continuous 50 cps cycling of the sample, but it comes back if the crystal is let to rest. The

shape of the switching current versus time curves which can be obtained when the intrinsic bias is compensated by an externally applied bias does not change markedly.

Since CHYNOWETH<sup>6)</sup> found in his X-ray experiments a correlation between the direction of the bias and the direction of polarization we were

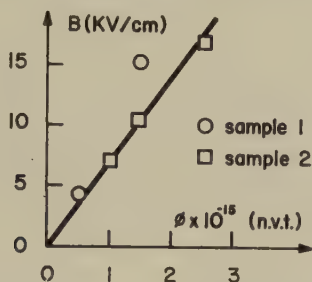


Fig. 4

Intrinsic bias  $B$  versus integrated neutron flux  $\phi$

interested in the same question in our neutron bombardment experiment. The simplest way to answer this question would be to take many crystals, to polarize half of them in one direction and the other half in the opposite one, to irradiate all of them and then to investigate the direction of the bias. Unfortunately, this straightforward method is not possible, as almost all the TGS crystals show a small bias even before irradiation. This intrinsic bias is normally so small that it can be ignored in experiments which are performed within a minute or so. However, as in our case a period of at least a day elapses between the treatment of the crystal in our laboratory and the irradiation, even a very weak bias can switch the polarization of the crystal. We have therefore followed a different procedure: We polarized all the crystals in the direction of the small intrinsic bias so that the samples were in a very stable state.

We found that the bias caused by irradiation is in the same direction as the small original bias so that it appears that there is a preferred direction in the crystal. However, this preference is not necessarily the same throughout the crystal. There are many crystals which before irradiation are partly biased in one direction and partly in the opposite direction (Fig. 5a). It thus appears that before irradiation at field strength  $E = 0$  either the domains are all aligned in one direction, from which follows a biased hysteresis loop or else they are partially aligned, from which follows a type of double loop as shown in Figure 5a. Upon irradiation the hysteresis loop splits up into a double loop (Fig. 5b) whereby in both loops the bias increases with irradiation according to the curve of Figure 4.



Of course, the polarities of the bias of the two loops are opposite to each other. Furthermore, for each of the two loops the coercive field increases and the spontaneous polarization decreases according to Figures 2 and 3, respectively.

The results obtained by bombarding TGS crystals with neutrons are very different from those obtained by bombarding  $\text{BaTiO}_3$ <sup>1)3)</sup> crystals.

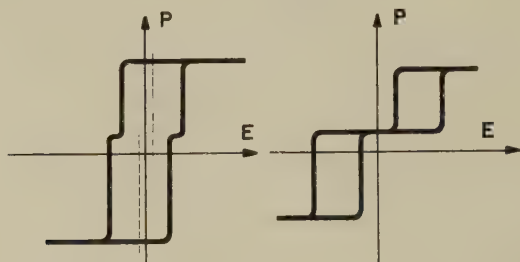


Fig. 5a

Hysteresis loop before irradiation

Fig. 5b

Hysteresis loop after irradiation

Whereas in TGS the coercive force increases upon radiation, it decreases in  $\text{BaTiO}_3$ . The results obtained on TGS are much more similar to the ones obtained by CHYNOWETH<sup>6)</sup> on TGS with X-ray bombardment. It seems that the results depend more on the material than on the type of radiation.

We wish to thank Dr. W. J. MERZ for many helpful discussions and Reaktor A.G. for their cooperation.

#### References

- 1) ISSAI LEFKOWITZ, J. Phys. Chem. Solids *10*, 169 (1959).
- 2) WITTELS and SHEVRIL, J. Appl. Phys. *28*, 606 (1957).
- 3) LEFKOWITZ and Mitsui, J. Appl. Phys. *30*, 269 (1959).
- 4) H. KRUEGER, Bull. Amer. Phys. Soc., Series II, *4*, 425 (1959).
- 5) I. S. SHELUDEW, M. A. PROSKURMIN, W. A. JURIN, and A. C. BOBERKIN-Doklady *103*, 207 (1955).
- 6) CHYNOWETH, Phys. Rev. *113*, 159 (1959).

## Action d'un champ électrique sur l'état intermédiaire d'un superconducteur

par F. HAENSSLER et L. RINDERER

(Laboratoire de Physique, Université de Lausanne)

GORTER<sup>1)</sup> a suggéré la possibilité d'un modèle non stationnaire d'état intermédiaire d'un superconducteur dans lequel les domaines superconducteurs allongés doivent se placer parallèlement au champ magnétique et au champ électrique (lorsque le superconducteur est parcouru par un courant électrique, par exemple). Nous avons déjà montré expérimentalement<sup>2)</sup> que lorsqu'un fil cylindrique superconducteur est parcouru par un courant légèrement supérieur au courant critique, on obtient par la méthode des poudres superconductrices développée par SHAWLOV<sup>3)</sup>

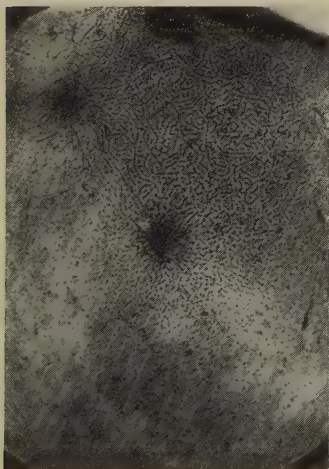


Fig. 1

Etat intermédiaire  $T = 2^\circ\text{K}$ ,  $H_\perp = 125\text{ Oe}$ ,  $I = 0$ . Champ appliqué avant le refroidissement.

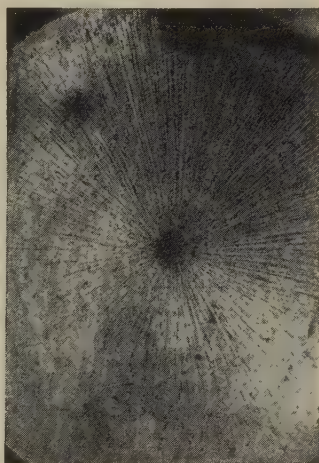


Fig. 2

Etat intermédiaire  $T = 2^\circ\text{K}$ ,  $H_\perp = 125\text{ Oe}$ ,  $I = 0$ . Champ appliqué après le refroidissement.

une structure conforme au modèle de LONDON<sup>4)</sup>. D'autres expériences dans différents échantillons d'Etain et d'Indium nous ont permis de constater que, une fois l'état intermédiaire établi au moyen d'un champ magnétique extérieur  $H_{ext} < H_c$ , le passage d'un courant électrique (= application d'un champ électrique au sein même du métal) a pour effet dans tous les cas d'orienter les domaines perpendiculairement à la direction du courant électrique (donc au champ électrique), contrairement au modèle

de Gorter. Il semblerait donc que l'action directe du champ électrique soit négligeable vis-à-vis de celle du champ magnétique produit par le courant électrique accompagnant nécessairement le champ électrique dans un métal. La figure 3 montre l'état intermédiaire d'une plaque d'Indium de 3 mm d'épaisseur et de 40 mm de diamètre, à une température de  $2^{\circ}\text{K}$  soumise à un champ magnétique perpendiculaire de 125 oe et parcourue radialement du centre vers les bords par un courant électrique d'une intensité de 100 Ampères. On voit bien au centre de la plaque les domaines de forme circulaire, donc perpendiculaires à la direction de  $\mathbf{E}$ .

Ce phénomène donne une explication de la différence que l'on observe dans les structures de l'état intermédiaire des figures 1 et 2, ob-

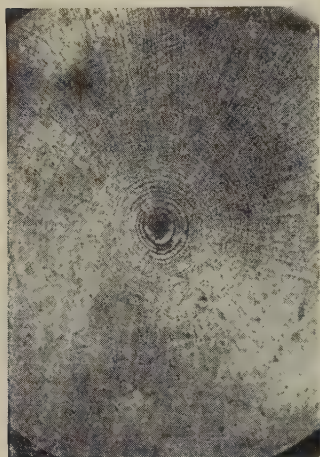


Fig. 3

Etat intermédiaire  $T = 2^{\circ}\text{K}$ ,  $H_{\perp} = 125\text{ Oe}$ ,  $I = 100\text{ A}$ . Champ, puis courant appliqués après refroidissement.

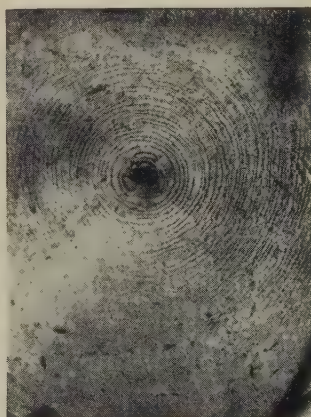


Fig. 4

Etat intermédiaire  $T = 2^{\circ}\text{K}$ ,  $H_{\perp} = 125\text{ Oe}$ ,  $I = 60\text{ A}$ . Champ et courant appliqués avant refroidissement.

tenues dans les mêmes conditions finales de température et de champ magnétique: dans le cas N° 2, la variation du flux de  $\mathbf{H}$  au moment où l'on a appliqué le champ magnétique extérieur a produit des courants électriques circulaires qui ont aligné les domaines en formation perpendiculairement à leur direction de propagation, ce qui a déterminé cette structure en forme d'étoile.

En soumettant la plaque à l'action conjuguée du champ magnétique extérieur et du courant électrique pendant le refroidissement, on obtient une structure très régulière, formée uniquement de domaines circulaires

concentriques (fig. 4). Si l'action directe du champ électrique sur les domaines peut être négligée, on peut utiliser cette méthode comme une variante de la méthode de SHAWVITZ<sup>2)</sup> de mesure de l'énergie de surface en champ oblique. En appliquant les résultats de la théorie de LIFSHITZ et SHARVITZ<sup>3)</sup>, nous trouvons dans notre cas comme première estimation une longueur caractéristique  $\Delta = 4 \cdot 10^{-5}$  cm.

#### Bibliographie

- <sup>1)</sup> C. J. GORTER, *Physica* 23, 45 (1957).
- <sup>2)</sup> L. SHAWVITZ et F. HANCOCK, *Helv. Phys. Acta* 32, 320 (1959).
- <sup>3)</sup> A. L. SCHAWLOW *et al.*, *Phys. rev.* 95, 1344 (1954).
- <sup>4)</sup> L. SHAWVITZ, *Superconductivity*, Cambridge Univ. Press (1952).
- <sup>5)</sup> L. P. LIFSHITZ, *J. Exptl. Theor. Phys.* 32, 1341 (1957) — *Jour.* 6, 1031 (1958).
- <sup>6)</sup> R. M. LIFSHITZ et L. P. SHARVITZ, *Dokl. Akad. Nauk* 79, 763 (1951).

### Wechselwirkungen langer Reichweite zwischen magnetischen Momenten in Halbleitern

VON W. BALTENSPERGER UND A. M. DE GRAAF  
(Laboratorium für Festkörperphysik, ETH, Zürich)

Ein ausführlicher Bericht erscheint in den *Helv. Phys. Acta*

### Bias in ferroelectric Colmanite

by E. FATUZZO  
(Laboratories RCA Ltd., Zurich)

A detailed description of the work will appear in the *Journal of Applied Physics*.

### Théorie du spectre d'absorption optique des sels de gadolinium

par R. LACROIX  
(Institut Physique, Genève)

Un article complet paraîtra prochainement.



## Electrical and Optical Properties of Zinc Sulfide Crystals in Polarized Light

J. A. BEUN and G. J. GOLDSMITH\*

(Laboratories RCA Ltd., Zurich)

Single crystals of ZnS occur in a hexagonal and in a cubic modification. Crystals prepared by the conventional vapor phase condensation method usually consist of layers of hexagonal and cubic ZnS<sup>1</sup>)<sup>2</sup>). The crystals were grown by Dr. R. Nitsche of this laboratory from reagent grade zinc (Merck) and high purity H<sub>2</sub>S (Mathieson) with no added impurities. They were in the form of thin platelets about 5 mm × 2 mm and 5–40  $\mu$  thick and appeared on visual inspection transparent, colorless and free of flaws except for occasional fine lines. They were found to be neither fluorescent nor electroluminescent. Upon examination between crossed polarizers they were observed to fall into either of three groups:

(a) Crystals which look white. These are generally extremely thin and nearly homogeneously hexagonal.

(b) Crystals which appear black or grey on first observation but on closer examination were found to contain many fine bright lines. These are apparently mainly cubic although they never form a pure phase.

(c) Crystals which are made up of many bands of various colors, often also with black sections. These bands or striations are always aligned perpendicular to the hexagonal *c*-axis. They correspond to regions of cubic and hexagonal structure. In the hexagonal parts periodical stacking faults occur and give rise to the variety of colors<sup>1</sup>).

On a series of crystals of each class the optical transmission, the photoconductivity and the photovoltaic effect were measured. The basic instruments for these measurements were a quartz double monochromator with a Xenon high pressure arc as light source and a Glan-Thompson prism as polarizer. The system permitted detection of optical absorption ratios down to a few times 10<sup>-5</sup> in the ultraviolet. The spectral bandwidth used is about 1 Å.

The results of the optical measurements are shown in Figure 1 for a typical crystal of each group. No corrections were applied for reflection or scattering losses, since the untreated crystal surfaces were not flat enough to make such corrections feasible and since we were not able to polish the fragile platelets.

From Figure 1 one can see that the mainly cubic crystals show a sharp edge at about 0.34  $\mu$  which is in excellent agreement with the data given by other authors<sup>3</sup>). There is no influence of the direction of polarization

\*) Permanent address: RCA Laboratories, Princeton, N. J., USA.



as should be expected for cubic crystals. The mainly hexagonal crystals show a sharp edge around  $0.33\ \mu$ , which is somewhat on the short wavelength side of the values mentioned in the literature<sup>3-7</sup>). Light polarized perpendicular to the  $c$ -axis is more strongly absorbed as light polarized

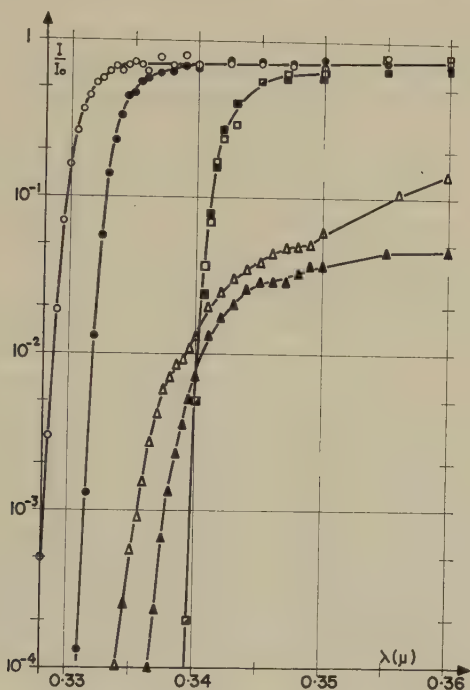


Fig. 1

Transmission as a function of wavelength for various crystals in polarized light.

- |                                  |                                |
|----------------------------------|--------------------------------|
| ○ «white» crystals               | □ «black» crystals             |
| △ «colored» crystals             |                                |
| open signs $E \parallel c$ -axis | filled signs $E \perp c$ -axis |

parallel to the  $c$ -axis. The distance between the two curves for hexagonal ZnS is about  $30\ \text{\AA}$  in perfect agreement with the results of PIPER *et al.*<sup>6</sup>). The crystals of group  $c$  exhibit a less sharp edge somewhere between  $0.33\ \mu$  and  $0.34\ \mu$ ; there is a marked dependence on polarization up to long wavelengths. At long wavelengths up to  $0.7\ \mu$  little or no additional structure was observed in all our crystals. The apparent absorption in this region is probably due to scattering at the surface. It could be shown by the Tolansky-method that the surface is particularly rough for crystals of group  $c$ .

Recently crystals have been obtained by the so-called 'chemical-transport-method'<sup>8</sup>), using iodine as a transporter. These crystals are

purely cubic and can be polished. The results discussed above were completely confirmed by measurements on these crystals.

The spectral dependence of photoconductivity and photovoltaic effects was measured along the hexagonal *c*-axis (perpendicular to the striations). Indium amalgam contacts were used throughout. Apparently because of the presence of many shallow traps it was sometimes necessary to make the electrical measurements in the presence of steady infra-red illumination to avoid persistent electrical polarization effects. With an applied voltage of 10 volts across a gap of 3 mm the dark current was of the order of  $10^{-13}$  Amp. The spectral bandwidth employed was 30 Å and the light intensity corresponded to the order of  $10^{13}$  photons per second incident on the crystal.

The electrical studies are often disturbed by polarization effects which persist even at elevated temperatures and which are frequently the cause of non-linear current voltage relationships and non-reproducible behavior. The photoconductivity maxima occur slightly to the short wavelength side of the absorption edge in the platelets but exactly at the edge for the cubic crystals obtained by the 'chemical transport reaction'. Crystals of type *a* and *c* show a shift in the maximum with the direction of the polarization of about 25 Å in reasonable agreement with the absorption measurements.

Measurements of short circuit current made on the most perfect examples of 'white' crystals available to us exhibited characteristic sign reversals with wavelength (Fig. 2). One reversal occurs in the vicinity of  $0.35 \mu$  and is independent of polarization direction. A second polarization dependent reversal occurs at a wavelength corresponding to that of the

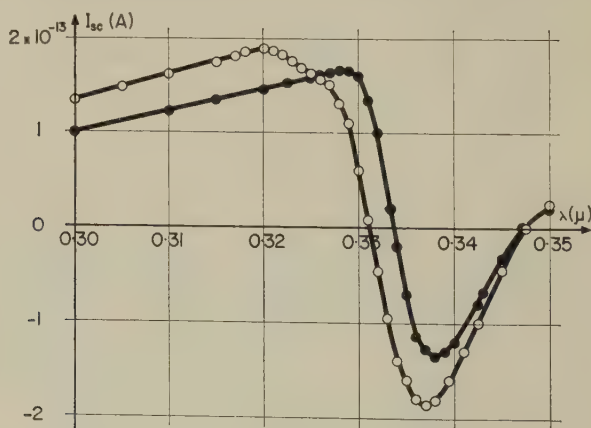


Fig. 2

Short circuit current versus wavelength for typical «white» crystals in polarized light and additional infrared light. Not corrected for light intensity.

beginning of the steep portion of the transmission curves. The shift with polarization is about 30 Å. These results are in contradiction to those of LEMPICKI<sup>9</sup>) for good hexagonal samples (selected by X-ray measurements) in which there is no sign reversal. This is probably an indication that our samples contain a considerably greater number of stacking faults than do those measured by LEMPICKI.

'Black' crystals show no shift in the spectral dependence of short circuit current and only a single sign reversal corresponding to the wavelength of the beginning of the steep part of the transmission curve. Polarization dependent sign reversals also occur in 'colored' crystals.

As observed by CHEROFF and KELLER<sup>7</sup>), by LEMPICKI<sup>9</sup>) and by MERZ<sup>10</sup>) the open circuit voltage at most wavelengths saturates at rather low light levels, but at wavelengths near the sign reversals it exhibits a stronger intensity dependence. In agreement with observations of CHEROFF and KELLER<sup>7</sup>) a reversal of sign occurred upon changing the light intensity in some samples.

### Discussion

In order to compare the experimental results with various theoretical models, the relationship between the absorption coefficient and photon energy was examined. The absorption coefficients were calculated from the transmission values with the assumptions: a) The apparent absorption above 0.36  $\mu$  is caused by reflection and scattering and b) the wavelength dependence of reflection and scattering can be neglected over the range of interest. The best fit corresponded to the equation employed by MACFARLANE and ROBERTS<sup>11</sup>) in their studies on germanium.

$$K = A \left[ \frac{(\hbar\nu - E_g - k\theta)^2}{1 - \exp(-\theta/T)} + \frac{(\hbar\nu - E_g + k\theta)^2}{\exp(\theta/T) - 1} \right],$$

where  $E_g$  is the minimum energy bandgap and  $\theta$  the Debye temperature.

The first term in the above equation represents transitions with emission of a phonon and the second term, transitions with absorption of a phonon. On the assumption that phonon emission cannot take place at photon energies below a certain limiting value, the equation can be represented by two straight lines intersecting at the limiting energy  $\hbar\nu_1$ , and each part of the curve can be treated independently. This leads to two expressions for  $E_g$  and  $\theta$  (cf. BÖER and GUTJAHR<sup>12</sup>):

$$\begin{aligned} \hbar\nu_1 &= E_g + k\theta \quad (\text{limit of } \hbar\nu \text{ for emission}) \\ \text{and} \quad \hbar\nu_2 &= E_g - k\theta \quad (\text{limit of } \hbar\nu \text{ for absorption}) \end{aligned}$$

where  $\hbar\nu_2$  is the intercept with the abscissa.

The resulting plot is shown in Figure 3 for a 'white' crystal with two directions of polarization and for a 'black' crystal. For each the experimental data can be represented by two straight lines.

By means of these relations,  $E_g$  and  $\theta$  are calculated from our experimental data. The resulting values for  $E_g$  are, for the 'white' crystals, 3.73 eV for polarization parallel to the  $c$ -axis and 3.69 eV for perpendicular polarization. For 'black' crystals, the value is 3.59 eV. The Debye

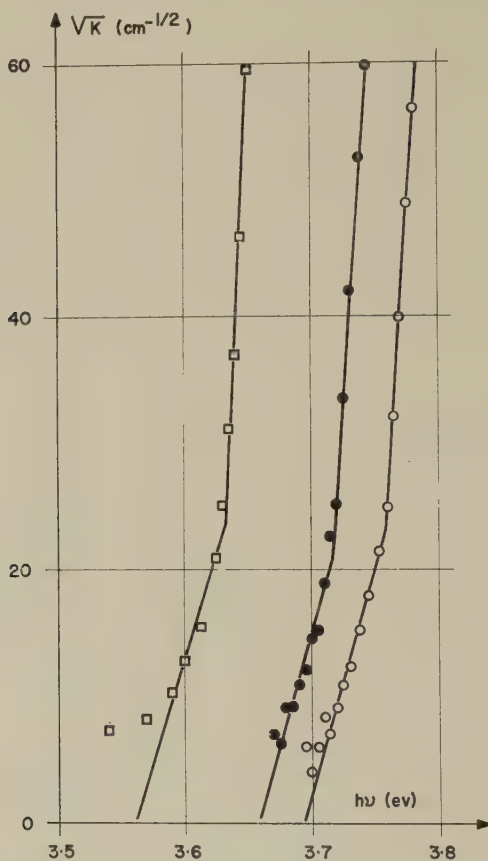


Fig. 3

Absorption coefficient as a function of photoenergy calculated from Fig. 1

- «white» crystal,  $E \parallel c$ -axis
- «white» crystal,  $E \perp c$ -axis
- «black» crystal

temperature for the 'white' crystals is 370° K and 340° K respectively for parallel and perpendicular polarization and for the 'black' crystals 425° K. The Debye temperature for cubic ZnS was calculated by KRÖGER<sup>13)</sup> to be 300° K. The values derived from our measurements must be taken to be only approximate since  $\theta$  is extremely sensitive to small changes in

the slopes of the experimental curves. The Debye temperatures obtained above give values for  $q = (1 - \exp(-\theta/T))/(\exp(\theta/T) - 1)$  which are in reasonable agreement with the measured relation of the slopes of the straight lines.

The fact that the experimental data fit so well to the above equation indicates that in ZnS indirect transitions between the valence band and the conduction band might be responsible for the absorption at the edge. Low temperature measurements are necessary to confirm this statement and will be performed in the near future.

It should be mentioned here that it is not impossible to describe our results also by an exponential law (cf. DUTTON<sup>14</sup>). It is not possible however to draw any conclusions concerning the nature of the transitions from this exponential dependence since, as suggested by DEXTER<sup>15</sup>), it arises from local fluctuations in the bandgap energy due to lattice dilations associated with thermal vibrations. These thermal processes mask the frequency dependence due to the transition mechanism.

As suggested by BIRMAN<sup>16</sup>) and KELLY and FREDERICKS<sup>17</sup>), the 0.04 eV difference in  $E_g$  between the two directions of polarization in the 'white' crystals found both in the optical and the electrical measurements is probably the spin orbit splitting in the valence band levels. This value is in agreement with that predicted by DRESSELHAUS<sup>18</sup>) for CdS which should not differ appreciably from that of ZnS since the splitting depends primarily on the anion<sup>16</sup>).

### *References*

- 1) L. W. STROCK and V. A. BROPHY, *Am. Mineralogist* **40**, 94 (1955).
- 2) L. W. STROCK, *Acta Cryst.* **10**, 840 (1957).
- 3) F. A. KRÖGER, *Physica* **7**, 1 (1940).
- 4) D. C. REYNOLDS and S. J. CZYZAK, *Phys. Rev.* **79**, 543 (1950).
- 5) W. W. PIPER, *Phys. Rev.* **92**, 23 (1953).
- 6) W. W. PIPER, P. D. JOHNSON, and D. T. F. MARPLE, *J. Phys. Chem. Solids* **8**, 457 (1959).
- 7) G. CHEROFF and S. P. KELLER, *Phys. Rev.* **111**, 98 (1958).
- 8) R. NITSCHKE, *J. Phys. Chem. of Solids* (in press).
- 9) A. LEMPICKI, *Phys. Rev.* **113**, 1204 (1959).
- 10) W. J. MERZ, *Helv. Phys. Acta* **31**, 625 (1958).
- 11) G. G. MARFARLANE and V. ROBERTS, *Phys. Rev.* **98**, 1865 (1955).
- 12) K. W. BÖER and H. GUTJAHR, *Z. Physik* **155**, 328 (1959).
- 13) F. A. KRÖGER, in *Am. Inst. Phys. Handbook* 4-47, (1957).
- 14) D. DUTTON, *Phys. Rev.* **112**, 785 (1958).
- 15) D. L. DEXTER, *Proc. 1957 Summer School Conf. (Suppl. Nuovo Cimento)* **7**, 245 (1958).
- 16) J. L. BIRMAN, *Phys. Rev. Letters* **2**, 157 (1959).
- 17) R. L. KELLY and W. J. FREDERICKS, *Phys. Rev. Letters* **2**, 389 (1959).
- 18) G. DRESSELHAUS, *Phys. Rev.* **105**, 135 (1957).



## Die Messung kleiner Wärmekapazitäten im Temperaturbereich von 1–10° K

VON JEAN MÜLLER

(Laboratorium für Festkörperphysik, ETH, Zürich)

Ein Programm zur Bestimmung der Elektronenwärmen in Legierungen verschiedener Übergangsmetalle verlangte die Möglichkeit der Messung kleiner Wärmekapazitäten bei tiefen Temperaturen. Zuzufolge der schwierigen Art der Präparation einwandfreier Proben (Van Arkel-Dissoziation, Homogenisierung durch Zonenschmelzen im Hochvakuum) stehen nur verhältnismässig geringe Substanzmengen zur Verfügung. Grundsätzlich bietet in diesem Fall eine indirekte Bestimmung der spezifischen Wärme durch gleichzeitige Messung der Temperaturleitfähigkeit und der Wärmeleitung wesentliche Vorteile, eine Vergleichsmöglichkeit mit direkter calorimetrischer Beobachtung ist jedoch auch bei Anwendung jener Methode wünschbar.

Die Forderung nach einer Messung von Wärme-Kapazitäten der Grössenordnung  $10^{-4} \text{ cal/}^\circ \text{ K}$  mit genügender Genauigkeit macht eine weitgehende Elimination möglicher Fehlerquellen notwendig. Ein weiteres Problem entsteht dadurch, dass aus verschiedenen Gründen auch ein wesentliches Temperaturgebiet oberhalb des Siedepunktes des Heliums zugänglich sein soll. Mit Bezug auf die Empfindlichkeit wurde nach Vorversuchen offensichtlich, dass die adiabatische Methode mit Austauschgas ungeeignet ist, da die Adsorptions- und Desorptionswärmen beträchtlich und unkontrollierbar sind. In Würdigung dieser Voraussetzungen waren deshalb folgende Punkte für den Aufbau des Cryostaten wegleitend:

- abgeschlossenes, vollständig von tiefer Temperatur umgebenes System mit Calorimeter im Ultrahochvakuum und mechanischem Wärmekontakt;
- genaue Temperatur-Eichmöglichkeit von 1,5 bis 10° K;
- minimale zusätzliche Wärmekapazitäten;
- kleine Temperatur-Messenergie und minimale Temperatur-Drift.

Das eigentliche Calorimeter besteht aus der Probe von etwa 0,1 Mol und einem Kohlefilm als Thermometer und Heizelement. Die Wärmekapazität des isolierenden Lackstreifens, des Films und der versilberten Kupfer-Kontaktschleifen macht bei tiefen Temperaturen einen Beitrag von weniger als 1% aus. Das Mess-System mit dem an feinen Fäden gespannten Calorimeter wird bei Zimmertemperatur evakuiert und an einem Kupfer-Pyrex-Übergang abgeschmolzen. Das Konstruktionsprinzip des Cryostaten ist schematisch in Figur 1 wiedergegeben. Im Experimentierraum, im Innern eines in der Wandung permanent evakuierten

Pyrex-Hohlmantels, befindet sich wahlweise flüssiges Helium oder Heliumgas von bestimmter, stabilisierter Temperatur. Im Mess-System aus Kupfer sind zwei Gasthermometerkammern von  $35 \text{ cm}^3$  Volumen ein-

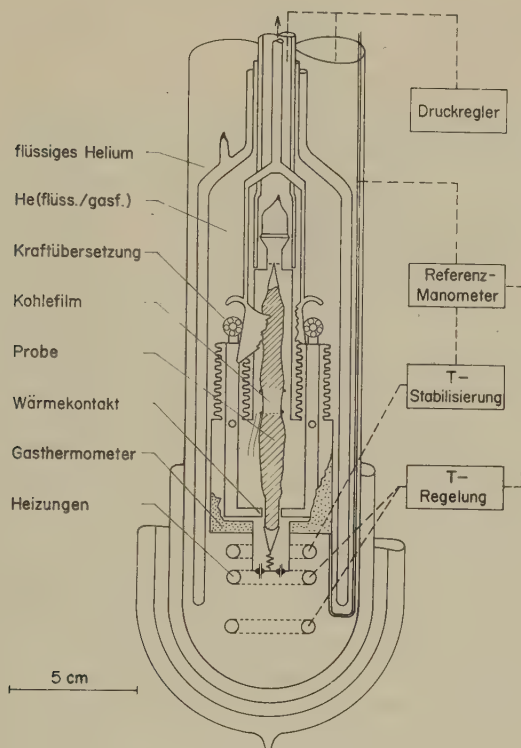


Fig. 1  
Calorimeter für  $1-10^\circ \text{ K}$

gebaut, die durch eine Neusilberkapillare mit dem regelnden Referenzmanometer verbunden sind.

Um bei geschlossenem Wärmekontakt zur Herstellung des thermischen Gleichgewichts befriedigende Kontaktleitfähigkeiten zu erzielen, sind nach den Untersuchungen von BERMAN<sup>1)</sup> bedeutende Kräfte notwendig. Andererseits ist eine möglichst leichte Konstruktion in der Gegend des Heliumniveaus anzustreben, um die Verdampfungsverluste klein zu halten. Aus diesem Grunde wurde eine etwa 20fache Kraftübersetzung angewendet, derzufolge das Zug- und Druckrohr aus Kunststoff des Bewegungsmechanismus nur je auf maximal 1 kg beansprucht werden. Bei dieser Anordnung wird eine Probe normalerweise in wenigen Minuten

von der Temperatur der flüssigen Luft auf  $4^{\circ}\text{K}$  abgekühlt. In einer kürzlichen Arbeit von *Manchester*<sup>2)</sup> werden die Charakteristiken ähnlicher mechanischer Wärmeschalter ausführlich beschrieben; für weitere Literaturzitate sei ebenfalls auf diese Publikation verwiesen.

Die Widerstandsmessung der Kohleschicht zur Bestimmung der Proben­temperatur erfolgt in einer Gleichstrom-Brückenschaltung mit photoelektrischem Galvanometerverstärker zur Nullanzeige. Im Hinblick auf unerwünschte Thermostrome sind hochohmige Filme von ungefähr  $3000\ \Omega$  und einem Gradienten von beispielsweise  $300\ \Omega$  pro Grad bei  $3^{\circ}\text{K}$  günstig. Das Widerstandsthermometer wird vor der Messung der spezifischen Wärme bei geschlossenem Kontakt im Vergleich zum Heliumbad resp. Gasthermometer geeicht.

Während der Messung der spezifischen Wärme sind möglichst isotherme Verhältnisse im System vorteilhaft. Die Energiezufuhr durch Joule'sche Wärme wird von einem Timer kontrolliert. In den meisten Fällen sind Temperaturintervalle von mehreren Hundertstel Grad zulässig und eine Messenergie von etwa einem erg noch vernachlässigbar. Die Grenze der Empfindlichkeit hängt schliesslich von der Energiezufuhr durch Vibrationen ab, die gegenwärtig noch teilweise bis  $1\text{ erg/sec}$  beträgt. Von einer günstigeren Aufstellung des Cryostaten wird hierin eine wesentliche Verbesserung erwartet.

Test-Messungen auf die beschriebene Weise wurden mit 15 g reinem Zinn durchgeführt. Die Resultate decken sich im vergleichbaren Bereich innerhalb 2% mit den Werten von *Corak* und *Satterthwaite*<sup>3)</sup>. Mit ähnlicher Genauigkeit konnte die spezifische Wärme einer Lanthan-Gadolinium Mischkristallprobe von etwa  $\frac{1}{10}$  Mol im Gebiet der supraleitenden Umwandlung gemessen werden<sup>4)</sup>.

#### *Literatur*

- <sup>1)</sup> R. BERMAN, J. Appl. Phys. 27, 318 (1956).
- <sup>2)</sup> F. D. MANCHESTER, Can. J. Phys. 37, 989 (1959).
- <sup>3)</sup> W. S. CORAK und C. B. SATTERTHWAITE, Phys. Rev. 102, 662 (1956).
- <sup>4)</sup> J. MÜLLER und M. RISI, Helv. Phys. Acta 33, 459 (1960).

### **Der Entropieverlauf in Supraleitern mit magnetischer Zulegierung**

VON JEAN MÜLLER und MARCEL RISI

(Laboratorium für Festkörperphysik ETH, Zürich)

Erscheint in Helv. Phys. Acta 33, 459 (1960).

## Über die Durchmesserabhängigkeit der magnetischen Widerstandsänderung von In bei tiefen Temperaturen

von P. COTTI

(Institut für kalorische Apparate und Kältetechnik, ETH, Zürich)

Bei tiefen Temperaturen kann der spezifische Widerstand in dünnen Drähten oder Filmen durch die Streuung der Leitungselektronen an den Probenwänden erhöht werden. Für den Fall eines Sommerfeld'schen Elektronengases ist der Einfluss eines longitudinalen Magnetfeldes auf diesen Effekt von CHAMBERS<sup>1)</sup>, und für transversale Felder von MACDONALD und SARGINSON<sup>2)</sup> theoretisch berechnet worden.

Durch das Magnetfeld werden die Elektronen auf spiralförmige Bahnen gezwungen. Die Geschwindigkeitskomponente parallel zum Feld bleibt unverändert. In genügend starken longitudinalen Feldern sollte deshalb die Streuung an den Probenwänden praktisch ganz eliminiert – der spezifische Widerstand also auf den entsprechenden Wert des dicken Materials reduziert werden können.

Im transversalen Fall ist eine weniger ausgeprägte Reduktion des spezifischen Widerstandes von dünnen Drähten zu erwarten. Auf jeden Fall sollte hier die durchmesserbedingte Erhöhung des spezifischen Widerstandes auch in höchsten Feldern nicht vollständig eliminiert werden können.

CHAMBERS hat seine Theorie mit Messungen an einer  $30\ \mu$  dicken Na-Probe verglichen und eine schöne Übereinstimmung erhalten. Seine höchsten Felder (ca. 8000 Oe) reichten aber noch nicht aus, um eine Reduktion des spezifischen Widerstandes bis auf den Wert des dicken Materials erwarten zu lassen.

OLSEN<sup>3)</sup> hat mit Messungen an sehr reinem In geprüft, wie gut sich die Überlegungen von CHAMBERS auf ein Material mit magnetischer Widerstandsänderung der dicken Proben übertragen lassen. Seine Messungen an sehr reinem In stimmen qualitativ gut mit dieser Theorie überein. Es zeigt sich jedoch, dass die Elimination der Wandstreuung in den höchsten Feldern (ca. 12000 Oe) weniger ausgeprägt ist, als dies nach der Theorie zu erwarten wäre.

Wir haben jetzt ähnliche Messungen in pulsierenden Magnetfeldern bis zu 80000 Oe ausgeführt (Impulsdauer: ca. 0,2 sec). Die Resultate sind in Figur 1 zusammen mit dem nach OLSEN berechneten Verlauf dargestellt. Wegen Wirbelstromaufheizeffekten ist es nicht möglich, in pulsierenden Feldern Messungen an dicken Proben auszuführen.

Die Tatsache, dass in unseren Proben der Widerstand in den höchsten Feldern im Gegensatz zu den Erwartungen wieder ansteigt, deutet auf einen starken Wiederanstieg des spezifischen Widerstandes des dicken Materials hin.

Abgesehen von diesem Effekt laufen aber unsere Messkurven nach rechts viel langsamer zusammen, als dies nach OLSEN zu erwarten ist.

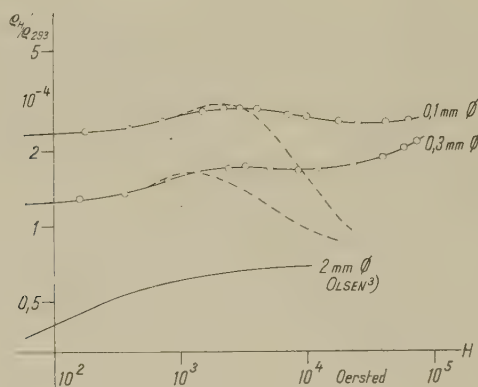


Fig. 1

Durchmesserabhängigkeit der magnetischen Widerstandsänderung von Indium in longitudinalen Magnetfeldern bei 2° K

----- berechnet für  $m \cdot \bar{v} = 2,7$ mal den Wert für freie Elektronen  
 $m \cdot \bar{v}$  = mittlerer Impuls der Elektronen auf der Fermi-Fläche

Die Wandstreuung kann also auch in den höchsten von uns verwendeten Magnetfeldern nicht vollständig eliminiert werden. Der mittlere Krümmungsradius der Elektronenbahnen ist hier aber bereits ca. 600mal kleiner als die mittlere freie Weglänge der Elektronen (für freie Elektronen berechnet). OLSEN<sup>4)</sup> hat darauf hingewiesen, dass dieses Verhalten zum Beispiel durch die Annahme von offenen Bahnen im  $k$ -Raum<sup>5)</sup> erklärt werden kann. Eine solche Annahme steht allerdings im Widerspruch zur Auffassung von ALEKSEEVSKII und GAIDUKOV<sup>6)</sup> und von LÜTHI<sup>7)</sup>.

In transversalen Magnetfeldern ist die Reduktion des Durchmesser-effektes wie erwartet noch schwächer als im longitudinalen Fall. Der Wiederanstieg in höchsten Feldern ist aber hier stärker ausgeprägt, was wiederum auf offene Bahnen hindeuten würde.

Diese Arbeit wurde vom Aluminium-Fonds-Neuhausen und vom Schweizerischen Nationalfonds finanziell unterstützt.



*Literatur*

- <sup>1)</sup> R. G. CHAMBERS, *Proc. Roy. Soc. A* **202**, 378 (1950).
- <sup>2)</sup> D. K. C. MACDONALD and K. SARGINSON, *Proc. Roy. Soc. A* **203**, 223 (1950).
- <sup>3)</sup> J. L. OLSEN, *Helv. Phys. Acta* **31**, 713 (1958).
- <sup>4)</sup> J. L. OLSEN, private Mitteilung.
- <sup>5)</sup> I. M. LIFSCHITZ, M. Y. AZBEL, and M. I. KAGANOV, *J. Exp. Theor. Phys. USSR* **30**, 220 (1956).
- <sup>6)</sup> N. E. ALEKSEEVSKII und YU. P. GAIDUKOV, *Soviet Physics, USPEKHI* **2**, 329 (1959).
- <sup>7)</sup> B. LUETHI, *Helv. Phys. Acta* **33**, 161 (1960).

**Monte-Carlo-Methode  
zur Berechnung der Leitfähigkeit in dünnen Drähten**

von B. LÜTHI und P. WYDER

(Institut für kalorische Apparate und Kältetechnik, ETH, Zürich)

Eine ausführliche Arbeit erscheint bald.

**Ummagnetisierungsvorgänge  
in dünnen ferromagnetischen Ni-Fe-Schichten**

von S. MIDDELHOEK

(I. B. M. Forschungslaboratorium, Zürich)

In dünnen 80–20 Ni-Fe-Schichten lässt sich durch Aufdampfen in einem Magnetfeld bekanntlich eine einachsige magnetische Anisotropie induzieren<sup>1)2)</sup>. Um die Magnetisierung in der Schichtebene um den Winkel  $\theta$  aus der leichten Anisotropierichtung herauszudrehen, muss pro Volumeneinheit die Anisotropieenergie

$$E_K = K \sin^2 \theta$$

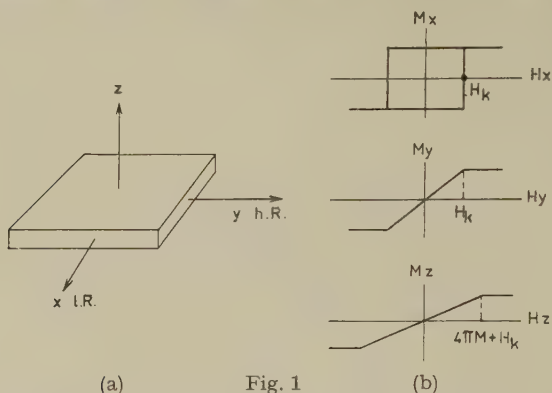
aufgewendet werden. Die unter dem Einfluss eines Magnetfeldes  $\mathbf{H}$  sich einstellende Gleichgewichtslage der Magnetisierung einer Eindomänenschicht findet man aus der Bedingung, dass die Gesamtenergie ein Minimum ist:

$$E = E_K - \mathbf{M} \cdot \mathbf{H} = K \sin^2 \theta - M H_x \cos \theta - M H_y \sin \theta = \min.$$

$$\frac{\partial E}{\partial \theta} = 2 K \sin \theta \cos \theta + M H_x \sin \theta - M H_y \cos \theta = 0.$$

Dabei ist  $M$  die Magnetisierung und  $H_x$  bzw.  $H_y$  sind die Feldstärkekomponenten in der leichten bzw. harten Richtung.

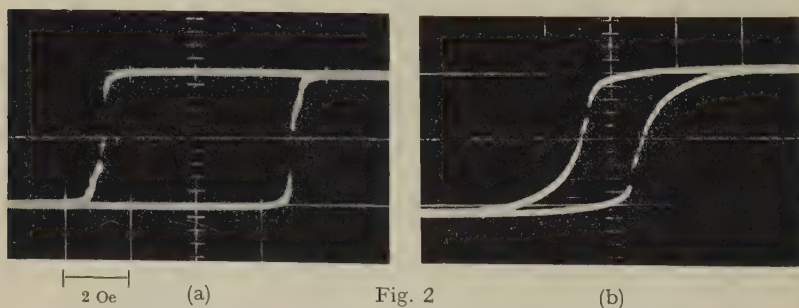
Für die Abhängigkeit der Magnetisierungskomponente in Feldrichtung vom angelegten Feld (Hysteresisschleife) sind drei Hauptrichtungen zu unterscheiden: Die Feldrichtung kann in der Schichtebene parallel zur leichten ( $x$ ) oder harten Richtung ( $y$ ), oder senkrecht zur Schichtebene ( $z$ ) gewählt werden (Fig. 1a). In Figur 1b sind die aus (2) folgenden Hyste-



Theoretische Hysteresisschleifen in den drei Hauptrichtungen

resisschleifen für diese drei Hauptrichtungen dargestellt. Die Koerzitivkraft in der leichten Richtung und die Sättigungsfeldstärke in der harten Richtung sind gleich der Anisotropiefeldstärke  $H_K = 2K/M$  (ca. 5 Oe). Für die Hysteresisschleife senkrecht zur Schichtebene liegt die Sättigungsfeldstärke wegen des Entmagnetisierungsfaktors von  $4\pi$  bei  $4\pi M + H_K$ , für 80/20 Ni-Fe-Legierungen also etwa bei 10000 Oe. Wenn Abweichungen vom Eindomänenzustand auftreten, sind auch Abweichungen von diesen theoretischen Kurven zu erwarten.

Zum Vergleich sind in Figur 2 die experimentellen Hysteresisschleifen in der leichten und in der harten Richtung gezeigt, wie sie bei vielen



Beobachtete Hysteresisschleifen in der leichten Richtung (a) und der harten Richtung (b)

Schichten beobachtet werden, die in einem Vakuum von  $10^{-5}$  Torr in etwa  $1000 \text{ \AA}$  Dicke auf Glasplatten gedampft wurden. In der leichten Richtung findet man eine Rechteckschleife mit einer kleineren Koerzitivkraft als  $H_K$  und die Schleife in der harten Richtung ist für Schichten mit relativ kleiner Anisotropie meistens geöffnet. Die kleinere Koerzitivkraft in der leichten Richtung ist darauf zurückzuführen, dass das Umschalten in dieser Richtung durch Wandverschiebung erfolgt; dieser Prozess ist in der Literatur bereits behandelt worden<sup>3)</sup>. Hier wird über Untersuchungen der Magnetisierungsvorgänge in der harten Richtung berichtet.

Beobachtet werden die Magnetisierungskomponenten parallel (longitudinale Schleife) und senkrecht (transversale Schleife) zum angelegten Feld. Figur 3 zeigt die verwendete Schaltung. Das elektronisch integrierte

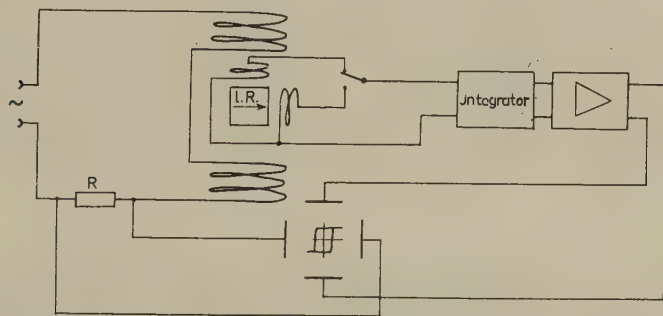


Fig. 3

Schaltung zur Aufnahme der longitudinalen und transversalen Hysteresisschleifen

Ausgangssignal der Aufnahmespule wird über einen Verstärker an die vertikalen Platten eines Kathodenstrahloszillographen geführt, der zum angelegten Feld proportionale Spannungsabfall an einem Widerstand im Treibspulenkreis liegt an den horizontalen Platten.

Bei Anlegen eines Wechselfeldes mit einer Amplitude  $> H_K$  in der harten Richtung kann der Magnetisierungsvektor sowohl eine Links- als eine Rechtsdrehung ausführen (Fig. 4a). Ein kleines Zusatzfeld in der leichten Richtung wird eine der beiden Drehrichtungen begünstigen, ohne Feld aber sind beide Drehrichtungen gleich wahrscheinlich und treten gleichzeitig auf, was mit einer Aufteilung der Schicht in Domänen verbunden sein muss<sup>4)</sup>. Figur 4 zeigt die longitudinalen (b) und transversalen (c) Hysteresisschleifen mit und ohne Zusatzfeld in der leichten Richtung. Im linken und rechten Bild führt die Magnetisierung eine reversible Drehung aus, welche in der Richtung des Zusatzfeldes erfolgt. Beim mittleren Bild ist kein Zusatzfeld angelegt und die transversale Schleife zeigt, dass die eine Hälfte der Magnetisierung der Schicht eine Links-, die andere

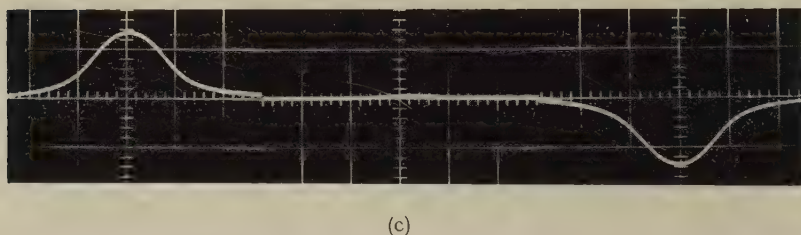
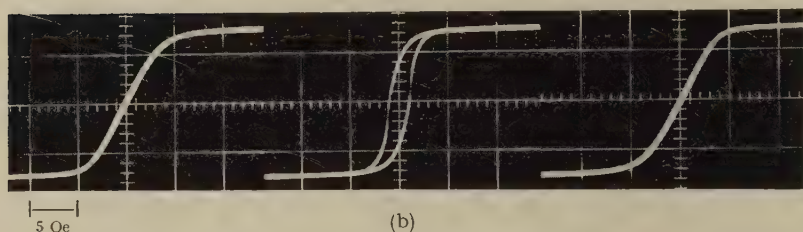
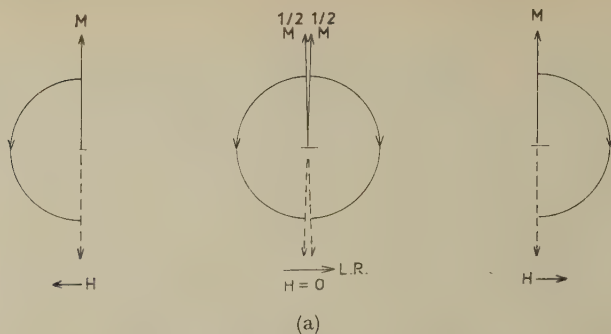


Fig. 4

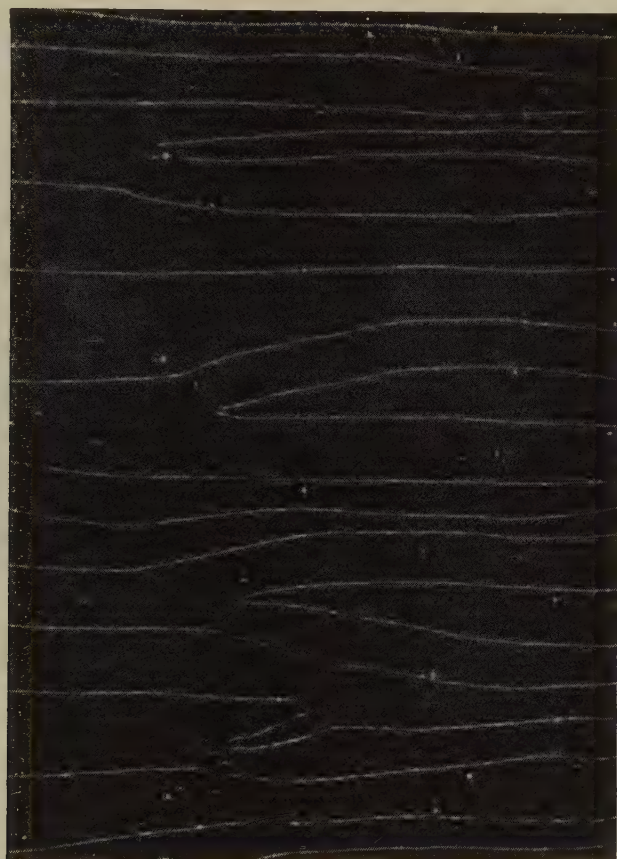
Longitudinale (b) und transversale (c) Hysteresisschleifen in Abhängigkeit von einem Zusatzfeld in der leichten Richtung

Hälfte eine Rechtsdrehung ausführt. Gleichzeitig tritt in der longitudinalen Schleife eine Öffnung auf, was die Annahme berechtigt, dass die Öffnung mit der Aufteilung in viele Domänen verbunden ist.

Figur 5 zeigt ein Bitterstreifenbild einer aufgeteilten Schicht. Man erkennt, dass die Aufteilung sehr fein und die gesamte Domänenwandlänge sehr gross ist. Es wurden Wandlängen bis zu  $10^4$  cm pro  $\text{cm}^2$  Schichtfläche beobachtet.

Die Aufteilung in links und rechts drehenden Domänen tritt in dem Moment auf, da der Feldvektor durch den Sättigungspunkt ( $H_x = 0$ ,

$H_y = H_K$ ) geht. Eine asymmetrische Schleife erhält man bei einem kleinen Zusatzfeld in der leichten Richtung, wenn das Wechselfeld einen kleinen Winkel mit der harten Richtung bildet (Fig. 6a). Nur in einer Halbperiode geht der Feldvektor durch den Sättigungspunkt und allein



0,1 mm

Fig. 5

Bitter-Streifenbild einer aufgeteilten Schicht

dann tritt Aufteilung auf, welche zur Remanenz führt, in der anderen Richtung tritt nur eine reversible Drehung auf. Die zugehörigen longitudinalen Hysteresisschleifen werden in Figur 6b gezeigt.

Die Beobachtungen zeigen also übereinstimmend, dass die Remanenz in der harten Richtung mit einer Aufspaltung der Schicht in viele Domänen verbunden ist. Für eine quantitative Theorie hätte man die magnetostatische Kopplung der Domänen zu berücksichtigen und auch die



wegen der grossen Wandlänge beträchtliche Wandenergie in die Rechnung einzubeziehen. Die Höhe der Remanenz in der harten Richtung ist eng verbunden mit der Feinheit der Aufspaltung, welche durch die Inhomogenität der Schicht stark beeinflusst wird.

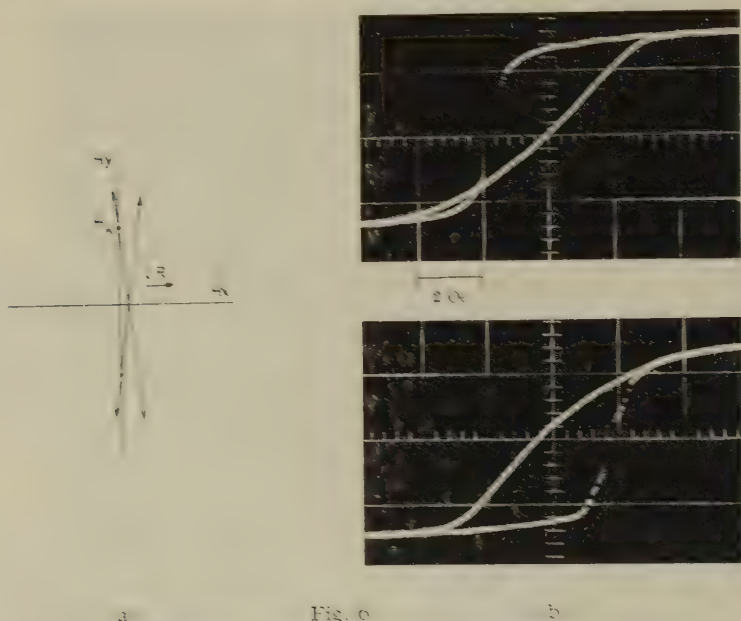


Fig. 6  
Hysteresisschleifen bei asymmetrischer Aussteuerung

#### Literatur

- <sup>1</sup> M. S. Blois, Jr., J. Appl. Phys. 26, 975 (1955).
- <sup>2</sup> D. O. Smith, J. Appl. Phys. 29, 264 (1958).
- <sup>3</sup> H. J. Williams and R. C. Sherwood, J. Appl. Phys. 28, 548 (1956).
- <sup>4</sup> C. D. Olson and A. V. Pohn, J. Appl. Phys. 29, 274 (1958).

### Absolutmessung einiger Alphaenergien

VON ALBRECHT RYDE, Zürich

Physik-Institut der Universität Zürich

Mit Hilfe des neuen Permanentmagneten des «Centre National de la Recherche Scientifique» in Orsay (S.-et-O., Frankreich) und eines eigens für Absolutmessungen konstruierten Spektrographen wurden sehr genaue Werte der  $\alpha$ -Energie einiger natürlicher Substanzen ermittelt.



Diese Arbeit wurde durch ein Stipendium des Commissariat à l'Energie Atomique und durch einen Beitrag der Kommission für Atomwissenschaft des Schweizerischen Nationalfonds ermöglicht.

Eine vorläufige Mitteilung erscheint nächstens in den Comptes Rendus de l'Académie des Sciences; die ausführliche Arbeit ist in Vorbereitung.

#### *Literatur*

- <sup>1)</sup> E. R. COLLINS, C. D. MCKENZIE, and C. A. RAMM, Proc. Roy. Soc. (London) *A* 216, 219 (1953).
- <sup>2)</sup> F. A. WHITE, F. M. ROURKE, J. C. SHEFFIELD, R. P. SCHUMAN, and J. R. HUIZENGA, Phys. Rev. 109, 437 (1958).
- <sup>3)</sup> G. H. BRIGGS, Proc. Roy. Soc. (London), *A* 157, 183 (1936).
- <sup>4)</sup> W. G. STURM and V. JOHNSON, Phys. Rev. 83, 542 (1951).

### **Absolutmessung der Resonanzenergie der Reaktion $\text{Ni}^{58}(p, \gamma)\text{Cu}^{59}$ bei 1,84 MeV**

von H. H. STAUB und H. WINKLER

(Physik-Institut der Universität Zürich)

Wir haben die Resonanzenergie der Reaktion  $\text{Ni}^{58}(p, \gamma)\text{Cu}^{59}$  bei 1,84 MeV, die bereits von BONDELID<sup>1)</sup> mit einem elektrostatischen Ablenker absolut gemessen wurde, mit einem absoluten magnetischen 180°-Spektrometer neu bestimmt. Diese Resonanz ist wegen ihrer kleinen Halbwertsbreite ( $\Gamma \leq 100$  eV) zum Vergleich der verschiedenen Methoden der Absolutbestimmung von Protonenenergien gut geeignet. Sie befindet sich ferner sehr nahe bei der Energie des Schwellenwertes der Reaktion  $\text{Li}^7(p, n)\text{Be}^7$ , für die wir kürzlich<sup>2)</sup> einen etwas tieferen Wert als BONDELID<sup>3)</sup> erhalten haben.

Wir verwendeten die schon von BUMILLER *et al.*<sup>4)</sup> beschriebene Apparatur. Das homogene Magnetfeld wird entlang der Protonenbahn mit Kerninduktions-Signalen ausgemessen. Für kleine Abweichungen vom Mittelwert des Feldes wurde in bekannter Weise nach HARTREE korrigiert. Zur Messung der Frequenz diente ein elektronisches Zählgerät Hewlett-Packard Typ 524 B, das mit einem Normalsender geeicht wurde. Der Radius der Protonen im Feld wird durch den Eingangsspalt bei 0° und den Ausgangsspalt bei 180° festgelegt. Beide Spalte waren 0,1 mm breit. Ihr Abstand von 1000,17 mm wurde durch Vergleich mit einem neu geeichten Normalmeter bestimmt. Bei 90° war ein Mittelspalt von 0,25 mm Öffnung angebracht. Da im homogenen Magnetfeld nach Ablenkung über 180° eine Richtungsfokussierung stattfindet, genügt es, die geometrische Lage des Mittelspaltes relativ zu den beiden anderen

Spalten auf  $\pm 0,5$  mm festzulegen. Der Mittelspalt begrenzt den Öffnungswinkel des Protonenstrahls im Magneten und stabilisiert zugleich mit isolierten Spaltbacken den van de Graaff-Generator. Bei der Aufnahme der Resonanzkurve wurde das Magnetfeld durch eine Kerninduktionsprobe auf  $\pm 2 \times 10^{-5}$  zeitlich konstant gehalten und zugleich mit derselben Probe gemessen. Da die Probe 10 mm von der Protonenbahn radial nach innen verschoben steht und der Magnet einen kleinen radialen Gradienten von ca.  $3 \times 10^{-5}$  pro mm hat, ist eine Korrektur der gemessenen Frequenzen nötig. Auch musste für die nicht völlig unmagnetische Vakuumkammer korrigiert werden. Alle Korrekturen zusammen sind, in Energie ausgedrückt, kleiner als 2 KeV. In die Berechnung der Beschleunigungsspannung der Protonen an der Resonanzstelle gehen ausser Spaltabstand und Frequenz der Kerninduktionsprobe nur noch die sehr genau absolut bekannten Grössen  $\gamma_p$ , gyromagnetisches Verhältnis des Protons und  $v_k/v_c$ , Verhältnis der Kerninduktionsfrequenz des Protons zu seiner Cyklotronfrequenz im gleichen Magnetfeld, ein.

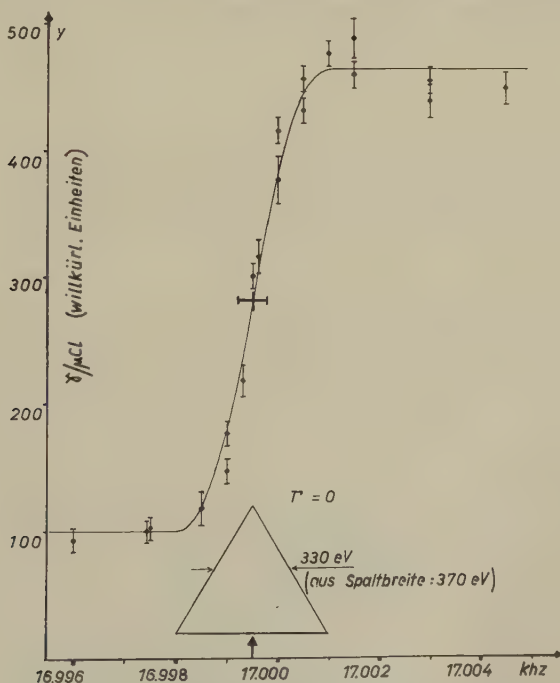


Fig. 1

$\gamma$ -Ausbeute als Funktion des Magnetfeldes (ausgedrückt in Frequenz der Kerninduktionsprobe). Die Fehler sind statistische Fehler der Einzelmessung. Die Kurve entspricht der unten angegebenen dreieckförmigen Energieverteilung der Protonen nach dem Magneten. (Halbwertsbreite der Resonanz vernachlässigt.)

Die Targets bestanden aus angereichertem  $\text{Ni}^{58}$ , welches elektrolytisch auf Silber niedergeschlagen wurde. Da die nächste grössere Resonanz der Reaktion bei 1,4 MeV liegt, ist es sehr einfach, für die gemessene Resonanz die Anregungskurve einer dicken Target ohne Störung durch andere Resonanzen zu erhalten. Die Target wurde auf  $200^\circ\text{C}$  geheizt. Die  $\gamma$ -Energie von 5,2 MeV macht eine Diskriminierung gegen die Fluor- $\gamma$ -Strahlung schwierig. Deshalb mussten besondere Abschirmungsmassnahmen gegen die von Verunreinigungen des Ausgangsspalt kommende Fluor- $\gamma$ -Strahlung getroffen werden. Der Strom betrug vor dem Eingangsspalt ca.  $5\text{ }\mu\text{A}$ , am Target ca.  $0,2\text{ }\mu\text{A}$ . Figur 1 zeigt eine der drei Messungen der Resonanz.

Alle drei Messungen mit zum Teil verschiedenen Korrekturen ergaben innerhalb  $\pm 100\text{ eV}$  den gleichen Wert der Resonanzenergie. Für die Fehler der Absolutwerte wurden alle uns bekannten statistischen und systematischen Fehler in Betracht gezogen und quadratisch addiert. Es ergibt sich ein Absolutwert von  $1842,9 \pm 0,45\text{ KeV}$ .

Der Kommission für Atomwissenschaft des Schweiz. Nationalfonds danken wir für finanzielle Unterstützung.

#### Literatur

- <sup>1)</sup> J. W. BUTLER und C. R. GOSSETT, Phys. Rev. 108, 1473 (1957).
- <sup>2)</sup> H. H. STAUB und H. WINKLER, Nuclear Phys. 17, 271 (1960).
- <sup>3)</sup> R. O. BONDELID und C. A. KENNEDY, NRL Report 5083 (1958).
- <sup>4)</sup> F. BUMILLER, H. H. STAUB und H. WEAVER, Helv. Phys. Acta 29, 83 (1956).

### $\alpha$ - $\gamma$ Winkelkorrelationsmessung am $\text{Be}^8$ -Kern

VON V. MEYER, H. H. MÜLLER, H. H. STAUB und R. ZURMÜHLE

(Physik-Institut der Universität Zürich)

Beim Einfang eines Protons durch einen  $\text{Li}^7$ -Kern entsteht ein hochangeregter  $\text{Be}^8$ -Kern. Die Bildungsreaktion hat für 441 KeV Protonen eine 12 keV breite Resonanz. Der so entstehende  $\text{Be}^8$ -Kern besitzt eine Anregungsenergie von 17,46 MeV. Sein Spin ist 1 und seine Parität positiv. Der Kern kann nun durch  $\gamma$ -Strahlung entweder direkt in den Grundzustand oder in den ersten angeregten Zustand bei 2,9 MeV übergehen. Im Gegensatz zum Ausgangsniveau haben diese beiden Zustände geradzahliges Spin und positive Parität. Sie können folglich in zwei  $\alpha$ -Teilchen zerfallen. Beim Zerfall über den 2,9-MeV-Zustand gestatten die Auswahlregeln Strahlungstypen mit Drehimpulsen 1, 2, 3 und positiver Parität. Insbesondere sind also magnetische Dipolstrahlung und elektrische Qua-



drupolstrahlung gestattet. Es ist anzunehmen, dass die beiden Strahlungstypen miteinander konkurrieren. Eine Messung der Winkelverteilung der  $\gamma$ -Strahlung ist zur Bestimmung des Mischungsverhältnisses ungeeignet. Da nämlich die magnetischen Subniveaus des 17,6-MeV-Zustandes annähernd gleichmässig besetzt sind, ist sie nahezu isotrop. Die  $\gamma - \alpha$ -Winkelkorrelation ist hingegen stark vom Mischungsverhältnis beeinflusst und ist deshalb zu seiner Bestimmung geeignet. Bei gleichmässiger Besetzung der Subniveaus des 17,6-MeV-Zustandes ist die Korrelationsfunktion von der Form

$$W(\theta) = (1 - 0,6 \cos^2 \theta) - \frac{2c}{15} (3 \cos^2 \theta - 1) + c^2 (1 - 3 \cos^2 \theta + 4 \cos^4 \theta),$$

wo  $\theta$  den Korrelationswinkel und  $c^2$  das Mischungsverhältnis von elektrischer Quadrupolstrahlung zu magnetischer Dipolstrahlung bedeuten. Messungen unter  $90^\circ$ ,  $135^\circ$ ,  $180^\circ$  liefern  $c^2 = 0,017 \pm 0,006$ . Es ist also nur eine schwache Beimischung von elektrischer Quadrupolstrahlung vorhanden.

Ein ausführlicher Bericht über diese Messung wird später veröffentlicht.

### Anomalies dans l'évaporation nucléaire du cuivre

par E. JEANNET, CL. BOVET, J. ROSSEL et E. VAUCHER

(Institut de Physique de l'Université de Neuchâtel)

Le travail qui fait l'objet de cette communication constitue une partie des recherches effectuées dans notre Institut sur les anomalies observées dans l'interprétation statistique de l'évaporation nucléaire<sup>1) 2) 3)</sup>.

Les prédictions de la théorie de l'évaporation nucléaire portent sur les grandeurs expérimentales suivantes:

1. *Les spectres d'énergie (des particules chargées)*. Différents travaux expérimentaux portant sur les noyaux lourds (Ag et Br) de l'émulsion nucléaire<sup>4)</sup> ainsi que les mesures effectuées dans notre Institut sur des noyaux bien définis, par la méthode du sandwich, ont mis en évidence:

a) une limite inférieure du spectre trop basse (par rapport à la hauteur de la barrière de Coulomb);

b) un excès de particules aux hautes énergies.

Ces deux anomalies sont surtout marquées pour les particules de charge  $Z \geq 2$ .

2. *Les distributions angulaires*. La théorie prévoit une distribution isotrope dans le système lié au noyau émetteur. Les anisotropies observées

sont supérieures à celles qui résulteraient du transfert d'impulsion au noyau.

3. *Les rapports d'émission des différentes particules.* Une telle mesure est délicate par la technique des plaques nucléaires; les méthodes de spallation (analyse radiochimique des noyaux résiduels) sont mieux adaptées à ces mesures mais ne fournissent aucune indication sur les points 1. et 2.

4. *La distribution en nombre de branches des étoiles* est également un point où théorie et expérience peuvent se comparer utilement. Nous attendons d'avoir accumulé une statistique plus complète avant de discuter ce point.

Le but de cette recherche a été de préciser les anomalies 1. et 2. en complétant les mesures déjà effectuées sur Cu, par l'utilisation d'un dispositif amélioré, permettant en particulier une discrimination certaine entre particules de charge  $Z = 1$  et  $Z \geq 2$ , et une détection efficace sous tous les angles.

Nous avons irradié une feuille de Cu de  $15 \mu$  d'épaisseur aux neutrons de 500 MeV produits au moyen du synchro-cyclotron du CERN\*). Les particules chargées émises lors de la réaction  $n + \text{Cu}$  ont été détectées au moyen d'émulsions nucléaires Ilford L-4. La feuille métallique était montée en sandwich entre deux émulsions sans support de  $330 \mu$  d'épaisseur; les neutrons incidents avaient une incidence de  $30^\circ$  par rapport à la normale à la feuille métallique.

Les particules issues du Cu ont été classées selon leur charge en « protons » ( $Z = 1$ ) et en « alphas » ( $Z \geq 2$ ); leur énergie a été mesurée au moyen de leur parcours (dans l'émulsion et dans le Cu) et l'angle  $\vartheta$  par rapport au flux incident a été déterminé. Le développement de l'émulsion était tel que seuls les protons d'énergie inférieure à 60 MeV étaient retenus, ce qui élimine d'office une partie des particules provenant de la cascade intranucléaire précédant l'évaporation.

### Résultats

1. *Spectres d'énergie.* On s'attend à ce que les particules de  $Z = 1$  soient des protons (60 à 80%), des deutons (20 à 30%) et des tritons (0 à 10%) selon les valeurs des paramètres «densité de niveaux» et «transparence de barrière» adoptés pour le calcul. Ce calcul, basé sur la théorie de l'évaporation nucléaire<sup>5)6)</sup>, utilise la méthode de Monte-Carlo pour calculer les évaporations successives de particules à partir d'un noyau excité et a été effectué par DOSTROVSKY *et coll.*<sup>7)</sup>. Notre spectre est donc une superposition des spectres de ces 3 types de particules qu'il est impossible de discriminer dans nos conditions; c'est pourquoi nous avons reporté en

\*) Nous remercions ici bien sincèrement MM. COMBE et GIBSON de leur hospitalité et l'équipe du SC qui s'est mise à notre disposition.

abscisse le parcours et non l'énergie (fig. 1). Les indications  $T$ ,  $D$ ,  $P$  correspondent à une barrière de Coulomb abaissée, d'environ 5 MeV. Cette valeur est estimée à partir de l'approximation  $V' = V(R + \lambda)$  où  $R = 1,4 \times 10^{-13} A^{1/3}$  est le rayon du noyau intermédiaire moyen de l'évaporation.

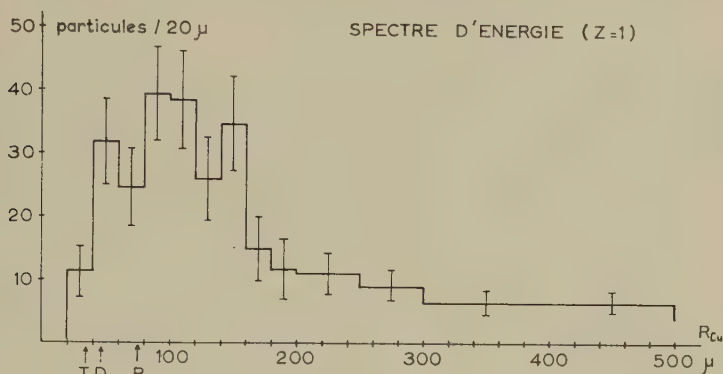


Fig. 1

tion. La figure 1 indique clairement un excès aux basses énergies. Une étude est en cours pour déterminer le rapport deutons/protons<sup>8)</sup>; cette valeur connue, il sera possible d'adapter notre spectre expérimental à une superposition de spectres théoriques.

L'excès souvent observé de particules aux hautes énergies est aussi constaté ici; toutefois il n'est pas aussi important que nos précédents travaux l'avaient laissé prévoir<sup>2)</sup>; et cet excès peut s'expliquer de façon naturelle en invoquant une contamination par la cascade nucléaire précédant l'évaporation proprement dite.

Les particules de charge  $Z \geq 2$  (fig. 2) sont principalement des alphas, aussi avons-nous pu tracer le spectre en énergie. La barrière de Coulomb estimée de la même manière que pour les «protons» conduit à  $V' \simeq 13$  MeV. L'adaptation d'une courbe d'évaporation théorique (calculée avec la température nucléaire fournie par le spectre des «protons») est incompatible avec les particules d'énergie supérieure à 20 MeV.

Ces deux spectres conduisent aux énergies moyennes indiquées dans le tableau I.

2. *Distributions angulaires* (fig. 3 et fig. 4). Pour les traces qui proviennent d'un processus d'évaporation (sans contamination de processus directs), c'est-à-dire celles qui proviennent «d'étoiles» à 2 branches et plus, le rapport  $a$  des traces émises vers l'avant aux traces émises vers l'arrière est:

pour  $Z = 1$ :  $a = 1,08$  (anisotropie compatible avec le transfert d'impulsion au noyau émetteur)

pour  $Z \geq 2$ :  $a = 1,93$

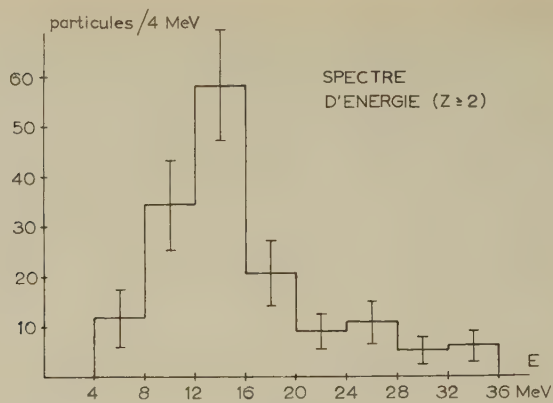


Fig. 2

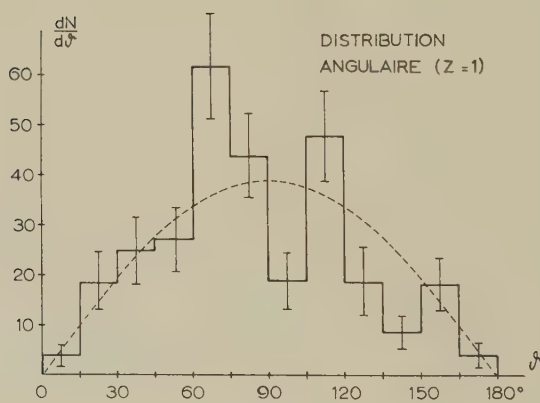


Fig. 3

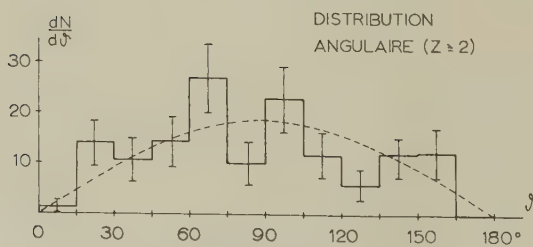


Fig. 4

Si l'on considère seulement les «alphas» d'énergie supérieure à 20 MeV (25% du nombre de particules  $\alpha$  détectées), l'anisotropie devient  $a = 3,7$ .

3. *Rapport d'émission.* Nous avons mesuré le rapport suivant entre le nombre de «protons» et le nombre d'«alphas»:

$$\frac{N(Z=1)}{N(Z \geq 2)} = 2,50$$

4. *Energie d'excitation moyenne.* La connaissance du nombre moyen de protons, d'alphas et de neutrons émis au cours de l'évaporation ainsi que les énergies cinétique et de liaison moyennes de ces particules permet de déterminer l'énergie d'excitation moyenne  $U_0$ . Les grandeurs relevantes déterminées ou calculées sont données dans le tableau I.

Tableau I

Nombre moyen de «proton» par événement . . . . .	$\bar{V}_p = 1,07$
Nombre moyen d'«alpha» par événement . . . . .	$\bar{V}_\alpha = 0,43$
Nombre moyen de neutrons par événement . . . . .	$\bar{V}_n = 3^a)$
Energie moyenne des particules de charge $Z = 1$ . . .	$\bar{E}_p = 7,9 \text{ MeV}^b)$
	$\bar{E}_\alpha = 12,2 \text{ MeV}^c)$
Energie moyenne des particules de charge $Z \geq 2$ . . .	$\bar{E}_\alpha = 15,9 \text{ MeV}$
Energie moyenne des neutrons . . . . .	$\bar{E}_n = 4 \text{ MeV}^d)$
Energie d'excitation initiale . . . . .	$U_0 = 65 \text{ MeV}^e)$

a) D'après les calculs de DOSTROVSKY *et coll.*<sup>7)</sup>.

b) Si toutes les particules sont interprétées comme protons.

c) Si toutes les particules sont interprétées comme deutons.

d) D'après la théorie de l'évaporation  $\bar{E}_n = 2 T$ ; avec la température déterminée d'après le spectre des protons:  $T = 2 \text{ MeV}$ .

e) En admettant une énergie de liaison de 8,5 MeV pour un nucléon et de 6 MeV pour un  $\alpha$ .

La valeur  $U_0 = 65 \text{ MeV}$  est à rapprocher de celle de METROPOLIS *et coll.*<sup>9)</sup> qui ont calculé par la méthode de Monte-Carlo l'énergie résiduelle de noyaux après la cascade intranucléaire et trouvé pour le cuivre irradié par des nucléons de 500 MeV:  $E_{rés} = 70 \text{ MeV}$ .

Ces auteurs ont aussi déterminé la distribution des énergies résiduelles après la cascade. Nous avons calculé numériquement l'influence de cette distribution sur les spectres des particules émises par évaporation. Cette influence est beaucoup trop faible pour rendre compte des écarts observés.

### Conclusions

1. Les excès de particules aux basses énergies, autant pour  $Z = 1$  que pour  $Z \geq 2$ , ne s'appliquent pas par l'approximation habituelle  $I' = I/(R - \lambda)$ ; l'hypothèse d'oscillations de déformation du noyau envisagée par BAGGE<sup>10)</sup> et reprise par DOSTROVSKY *et coll.*<sup>9)</sup> dans leurs calculs numé-



riques ne suffit pas à expliquer l'écart observé. Ces essais d'explication nous paraissent d'ailleurs superflus, du moins pour un noyau de la région du cuivre; un calcul basé sur des estimations raisonnables de la largeur  $\Gamma_d$  montre en effet que pour les  $\alpha$  mentionnés la transparence quantique de barrière conduit à une vie moyenne du noyau de l'ordre de  $10^{-16}$  s., assez faible pour être tout à fait compatible avec un modèle d'évaporation qui incorporerait de façon adéquate l'effet tunnel.

2. L'excès de particules « alphas » aux hautes énergies est lié à une forte anisotropie de ces particules; l'hypothèse d'une interaction directe (collision nucléon —  $\alpha$ ), valable pour les protons énergétiques n'a de sens que si l'on admet la préexistence des  $\alpha$  dans le noyau. Toutefois, le nombre de ces  $\alpha$  anormaux (25%) est trop grand par rapport au nombre des protons anormaux (moins de 5%) pour permettre une telle hypothèse. Cette anomalie, pour laquelle il paraît difficile actuellement de proposer une explication ouvre une intéressante perspective pour des investigations ultérieures dans ce domaine.

Nous tenons à remercier ici Mme Desponds de son travail consciencieux d'exploration et de reconstruction.

Ce travail a bénéficié de l'appui matériel de la C. S. A.

#### Bibliographie

- <sup>1)</sup> ZANGGER et ROSSEL, *Helv. Phys. Acta* **29**, 507 (1956).
- <sup>2)</sup> JEANNET, ROSSEL et VAUCHER, *Helv. Phys. Acta* **30**, 484 (1957).
- <sup>3)</sup> BOVET, JEANNET, ROSSEL et VAUCHER, *Helv. Phys. Acta* **31**, 588 (1958).
- <sup>4)</sup> HARDING, LATTIMORE et PERKINS, *Proc. Roy. Soc. A* **106**, 325 (1949).
- <sup>5)</sup> HEISENBERG, *Kosmische Strahlung*, 2<sup>e</sup> édition 1953 (Springer-Verlag).
- <sup>6)</sup> LE COUTEUR, *Proc. Phys. Soc. A* **63**, 259 (1950).
- <sup>7)</sup> DOSTROVSKY, RABINOVITZ et BIVUS, *Phys. Rev.* **111**, 1659 (1958).
- <sup>8)</sup> BOVET, *Helv. Phys. Acta* **32**, 507 (1959).
- <sup>9)</sup> METROPOLIS, BIVUS, STORM, TURKOVICH, MILLER et FRIEDLÄNDER, *Phys. Rev.* **110**, 185 (1958).
- <sup>10)</sup> BAGGE, *Ann. Physik* **33**, 389 (1938).

#### Erste Messungen mit dem hochauflösenden Spektrometer neuer Bauart

VON O. HUBER, L. SCHELLENBERG UND H. WILD  
(Fribourg, Inst. Phys.)

In einer früheren Arbeit <sup>1)</sup>, im folgenden mit Theorie bezeichnet, wurde gezeigt, dass das doppelt fokussierende Spektrometer mit dem Feldverlauf  $H = H_0(1 - \alpha q - \beta q^2 - \gamma q^3)$  für  $\alpha = 1$ ,  $\beta = 3$  S., und  $\gamma = 43$  144 auch Messungen mit Filmen erlaubt, wobei wie beim Halbkreispektro-

graph ein Energiebereich gleichzeitig registriert werden kann. Dadurch lässt sich besonders bei hohen Auflösungsvermögen schneller als mit Zählrohren arbeiten. Ferner wurde eine Bauart des Spektrometermagneten beschrieben, bei welcher ausser der Feldstärke auch ihre ersten beiden Ableitungen in radialer Richtung stabilisiert werden können. Damit wird einerseits der Feldverlauf unabhängig von der Hysteresis des Eisens und ferner kann die Poldistanz, da Randeﬀekte nicht stören, im Verhältnis zum Magnetdurchmesser sehr gross gemacht werden, wodurch wiederum der Raumwinkel grösser wird. In diesem Bericht soll über den Bau eines solchen Spektrometers und die ersten Eichmessungen berichtet werden.

Für die Konstruktion wurden die folgenden Daten vorgegeben:

Radius der Normalbahn	$a = 300 \text{ mm}$
Energiebereich	$0,02 - 2,5 \text{ MeV}$
Mag. Induktion	$16 - 330 \text{ Gauss}$
Max. radialer Austrittswinkel	$\varphi_r = 0,28$
Max. axialer Austrittswinkel	$\varphi_z = 0,4$
Maximaler Raumwinkel	$T = 3,5\%$
Maximale Auflösung	$A = 0,01\%$
Filmmessbereich	$dP = -8\ldots +8\%$
Filmlänge	$18 \text{ cm}$
Konstanz des Magnetfeldes	$dH/H = 5 \cdot 10^{-5}$
Konstanz des Gradienten	$d\alpha/\alpha = d\beta/\beta = 5 \cdot 10^{-4}$

Die Form des Magneten ist aus Figur 1 ersichtlich. Die Erregerwicklungen innen und aussen sind in mehreren unabhängigen Einzelspulen ausgeführt, um durch die variable Stromverteilung das Feld beeinflussen zu können. Zwischen den Spulen liegen die in der Theorie beschriebenen Leitbleche, durch deren Potential der Randeﬀekt verkleinert und die

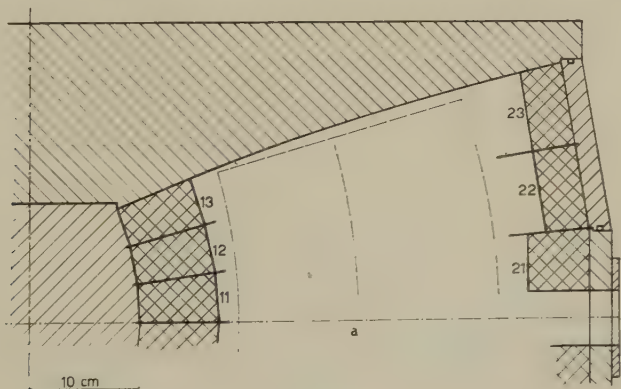


Fig. 1

Schnitt durch Magneten. Erregerwicklungen 11, 12 usw. als unabhängige Einzelspulen ausgeführt

Feldkoeffizienten gesteuert werden. Die für die maximale Feldstärke von 330 Gauss notwendige Erregung beträgt  $10^4$  Ampèrewindungen, wobei die Konstruktion des Magneten erfordert, dass die Summe der Ampèrewindungszahlen der inneren wie auch der äusseren Einzelspulen dieser Zahl entspricht.

Da das Spektrometer sowohl für Film- als auch Zählrohrmessungen benützt wird, sind mehrere Blendensysteme notwendig. Es gibt

1. Filmblende bei  $\Theta = 0,1$  ( $\Theta$  von Quelle aus gemessen) zur radialen Strahlbegrenzung.
2. Radialblende bei  $\Theta = \sqrt{2} \cdot 45^\circ$  und  $\sqrt{2} \cdot 135^\circ$  für Zählrohrmessungen.
3. Achsialblende bei  $\Theta = \sqrt{2} \cdot 135^\circ$  zur achsialen Strahlbegrenzung bei Film und Zählrohrmessungen.
4. Zählrohrblende vor Zählrohrfenster zur radialen Strahlbegrenzung.

Die Form der Radial- und Achsial-Blenden berechnet sich aus den Bahngleichungen. Die Filmblende muss nach Theorie möglichst nahe bei der Quelle liegen. Bei einem Abstand von  $\Theta \cdot a = 30$  mm kann die Blende durch ein achsial gerichtetes Geradenpaar angenähert werden. Die Zählrohrblende ist dem Linienprofil angepasst. Aus dem Linienprofil, gegeben durch die optimale Blendeneinstellung folgt, dass die innere Blendenhälfte um den dreifachen Betrag vom Normalradius entfernt sein muss, wie die äussere Blendenhälfte. Für die optimale Blendeneinstellung ist der Zusammenhang zwischen dem Austrittswinkel  $\varphi_r$ , der Quellenbreite  $b$  und dem Auflösungsvermögen  $A$  gegeben durch

$$\varphi_r = 0,173 \sqrt{A} \quad \text{und} \quad b(\text{mm}) = 12 A(\%)$$

Zur Stabilisierung des Feldes und dessen Gradienten wird das Feld durch eine Anordnung von drei mit 5000 Touren pro Minute rotierenden Pic-up Spulen gemessen, wobei ein zu erreichender Wert der Feldstabilität von  $2 \cdot 10^{-5}$  der Konstruktion zugrunde gelegt wurde. Als Referenzsignal dient das in einer auf der gleichen Welle rotierenden Spule durch einen Permanentmagneten erzeugte Spannungssignal.

#### *Eich-Messungen*

Das Ziel der ersten Messungen bestand darin Auskunft über die folgenden wichtigen Eigenschaften des Spektrometers zu erhalten: Verhalten des Eisens, Steuerbarkeit des Feldes, Fokussierungseigenschaften und das Auflösungsvermögen.

Die Linearität zwischen dem Spulenstrom und dem Magnetfeld wurde mit einer Hallsonde (FC 33 Siemens und Halske) gemessen. Es zeigte sich, dass bei einem Strom kleiner als 0,02 A das Feld stärker als proportional zunimmt. Zwischen 0,02 und 0,9 A ist der Gradient innerhalb der Messgenauigkeit konstant.

Die Messung der Remanenz des entmagnetisierten Magneten mit den Pick-up-Spulen ergab ein Feld von  $1,8 \cdot 10^{-2}$  Gauss. Die Achsialsymmetrie des Remanenzfeldes wurde an zwei  $45^\circ$  zueinander versetzten Punkten mit der Hallsonde am nicht evakuierten Spektrometer untersucht. Innerhalb der Fehlergrenze von 0,1 Gauss stimmten die Messungen überein.

Die Bestimmung der Feldkoeffizienten  $\alpha$  und  $\beta$  sowie der Feldstärke  $H$  wurde gleichfalls mit der Hallsonde durchgeführt. Aus der Messung der Hallspannung als Funktion des Radius  $r$  bei verschiedenen Spulenaussteuerungen wurden die Koeffizienten  $\alpha$  und  $\beta$  bestimmt. Der für die beste Einstellung gefundene Feldverlauf ist in Figur 2 mit dem theoretisch geforderten Verlauf  $H = H_0(1 - 0,5\varrho + 0,375\varrho^2 - 0,299\varrho^3)$  verglichen

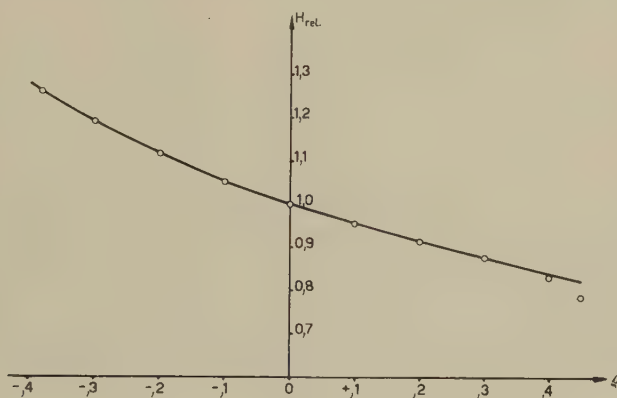


Fig. 2

Experimentell mit Hallsonde bestimmter Feldverlauf  $H(\varrho)$ , die ausgezogene Kurve gibt den theoretisch verlangten Verlauf wieder

Es zeigt sich eine sehr gute Übereinstimmung mit der theoretischen Kurve, bis auf den Abfall bei  $dr = +12$  cm, der wahrscheinlich auf Streufelder der beiden Spulen 21 zurückzuführen ist, die nicht an das mittlere Leitblech anliegen, um Platz für das Einführen von Quelle und Film freizulassen.

Die achsiale Fokussierung wurde mit einer in radialer Richtung ausgedehnten Quelle untersucht. Als Quelle wurde ein dickes  $^{198}\text{Au}$  Präparat benützt. Damit lassen sich wiederum  $\alpha$  und  $\beta$  bestimmen.

Weitere, wenn auch weniger empfindliche Kriterien für die optimale Einstellung sind durch die Dispersion und die Profilform gegeben. Der Abstand des Bildortes vom Normalradius als Funktion des Impulses ist nach der Theorie gegeben durch die Formel

$$\varrho^* = 4p + 2,66p^2 - 0,44p^3$$

Zur Messung der Dispersion wurde die  $K$ -Konversionslinie des 412 keV  $\gamma$ -Strahles von  $^{198}\text{Hg}$  für verschiedene Feldstärken auf den Film abgebildet. Die mittleren Abweichungen zwischen dem aus dem Bildort berechneten relativen Impuls  $P/P_0$  und der aus der Feldänderung mit der theoretischen Formel berechneten Impuls beträgt  $3 \cdot 10^{-4}$ , was innerhalb der Messgenauigkeit lag.

Das Linienprofil für Film und Zählrohrmessungen wurde in der Theorie berechnet. In Figur 3a ist das mit Film gemessene Profil der  $K$ -

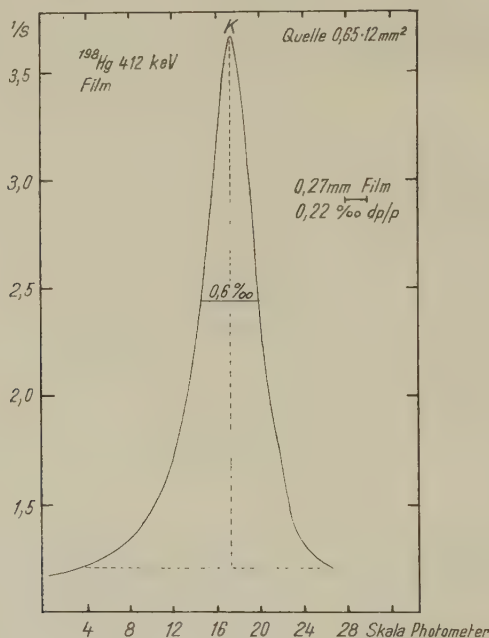


Fig. 3a

$K$ -Konversionslinie des 412 keV- $\gamma$ -Übergangs von  $^{198}\text{Hg}$ , auf Elektronenverteilung umgezeichnete Photometerkurve einer Filmaufnahme.

Konversionslinie von  $^{198}\text{Hg}$  aufgetragen. Der Quellbreite von 0,65 mm entspricht ein theoretisches Auflösungsvermögen von 0,055%; die gemessene Halbwertsbreite ergab ein  $dp/p$  von 0,06%. Die gleiche Linie wurde mit dem Zählrohr ausgemessen. Fig. 3b. Die Verschmierung durch den Zählrohrspalt (Spaltbreite = Quellbreite) ergibt eine Verschlechterung des Auflösungsvermögens um den Faktor 1,276. In unserem Fall bedeutet dies ein Auflösungsvermögen von 0,07%, gemessen wurden 0,08%. Die Abweichungen rühren im wesentlichen von Abbildungsfehlern her, die durch nicht ideale Einstellung verursacht sind. Mit den



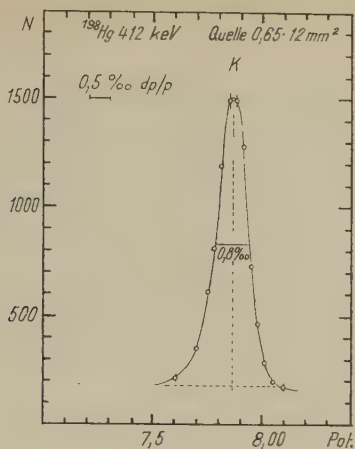


Fig. 3b

Gleiche Linie mit Zählrohr gemessen. Zählrohrspalt=Quellbreite.

Goldpräparaten wurde gleichfalls versucht die  $L$ -Linien zu messen. Da ihre Energie sehr gut bekannt ist und der Abstand  $L_1 - L_2$  0,1% beträgt, sind sie in unserem Fall ein bequemes Mittel zur Testung des Auflösungsvermögens. Die auf die Elektronenverteilung umgezeichnete Photometerkurve einer Filmaufnahme zeigt Figur 4. Die Quellbreite bei dieser Aufnahme mit noch nicht endgültig bestimmten Feldkoeffizienten beträgt 0,65 mm. Qualitativ stimmen die Intensitätsverhältnisse dieser mit

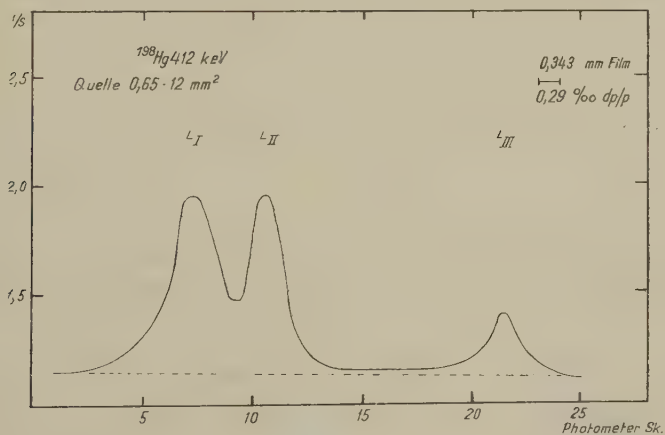


Fig. 4

$L$ -Konversionslinien des 412 keV- $\gamma$ -Übergangs von  $^{198}\text{Hg}$ , auf Elektronenverteilung umgezeichnete Photometerkurve einer Filmaufnahme

einem grobkörnigen Film gemachten Aufnahme mit den Messungen anderer Autoren überein<sup>2</sup>.

Bei all diesen Messungen war nur der Spektrometerstrom auf  $4 \cdot 10^{-5}$  stabilisiert, da die eigentliche Feldstabilisierung sich noch im Bau befindet. Neben Gold wurde auch die  $K$ -Linie des 662 keV  $\gamma$ -Strahles von  $^{137}\text{Cs}$  für die Eichmessungen benützt. Hierbei zeigte sich, dass die Feldkoeffizienten  $\alpha$  und  $\beta$  innerhalb des Energiebereiches 412–662 keV konstant bleiben.

Die zukünftigen Messungen werden die Variation der  $\alpha$  und  $\beta$  über den gesamten Energiebereich untersuchen, sowie eine weitere Verbesserung des Auflösungsvermögens zum Ziele haben. Die vorliegende Arbeit wurde durch den finanziellen Beitrag des Schweizerischen Nationalfonds unterstützt, dem wir an dieser Stelle danken.

Herrn T. Y. CHEN sind wir für seine wertvolle Mithilfe bei den Messungen zu Dank verpflichtet.

#### *Literatur*

<sup>2)</sup> H. WILD, O. HUBER, *Helv. Phys. Acta* 30, 3 (1957).

<sup>1)</sup> C. DE VRIES, Thesis Amsterdam 1960. – V. M. KEL'MAN, R. Y. METSKHVARISHVILI, *Sov. Phys. JETP* 9, 486 (1959). – D. REITMANN, H. SCHNEIDER, I. J. VAN HEERDEN, *Phys. Rev.* 110, 1093 (1958).

### **Abhängigkeit der Blasendichte von der Teilchenenergie in einer Freon-Blasenkammer**

VON B. HAHN und E. HUGENTOBLER

(Institut Physique, Fribourg)

Soll im Rahmen einer grösseren Arbeit demnächst publiziert werden.

### **Einige Ergebnisse zur Blasenbildung durch den $\alpha$ -Zerfall von $^{210}\text{Po}$ und durch schnelle Elektronen**

VON G. RIEPE und B. HAHN

(Physikalisches Institut der Universität Freiburg)

Eine Möglichkeit, etwas über den Mechanismus der Blasenbildung in einer Blasenkammer zu erfahren, besteht in der Nachprüfung der Energiebilanz<sup>1)</sup>, das heisst im Vergleich der zur Bildung einer Blase aufzuwendenden Arbeit mit der vom Teilchen geschaffenen Energiedichte.

Dabei geht es um eine Blase vom kritischen Radius  $r_c$ , der durch die Gleichgewichtsbedingung

$$r_c = \frac{2\sigma}{\Delta p} \quad \text{mit} \quad \Delta p = P_\infty - p$$

definiert wird. Hier bedeuten  $\sigma$  die Oberflächenspannung,  $p_\infty$  der Dampfdruck der Flüssigkeit und  $p$  der bei einer Expansion erreichte Druck.

Notwendig für solche Untersuchungen ist somit die Kenntnis der experimentellen Beziehungen zwischen der Blasendichte, der Druckdifferenz  $\Delta p$  (Überhitzungsgrad) und der Temperatur. Ausserdem müssen noch die Oberflächenspannung und die Verdampfungswärme bekannt sein.

Im Unterschied zu schnellen Elektronen erhält man beim  $\alpha$ -Zerfall von  $^{210}\text{Po}$  wegen der kurzen Reichweite (in  $\text{CCl}_2\text{F}_2$  ca.  $45\ \mu$ ) nur eine makroskopische Blase pro Zerfall.

Derartige Zusammenhänge sind von uns für den  $\alpha$ -Zerfall von  $^{210}\text{Po}$  (5,3 MeV) in FREON 12, dem  $\text{CCl}_2\text{F}_2$  und für schnelle Elektronen (31 MeV) in FREON 13 B1, dem  $\text{CBrF}_3$  und in  $\text{SF}_6$  bestimmt worden.

Zu den Versuchen wurde eine Blaskammer mit Druckstabilisierung verwandt, die konstante  $\Delta p$ -Werte für eine Dauer von 50 bis 150 ms ermöglichte.

Aus dem in Figur 1 wiedergegebenen Zusammenhang zwischen der Anzahl der gebildeten Blasen und dem  $\Delta p$  (bei einer festen Temperatur sowie einer festen Länge des Druckplateaus) entnimmt man, dass sich Blasen erst dann bilden, wenn das  $\Delta p$  einen bestimmten Wert überschreitet.

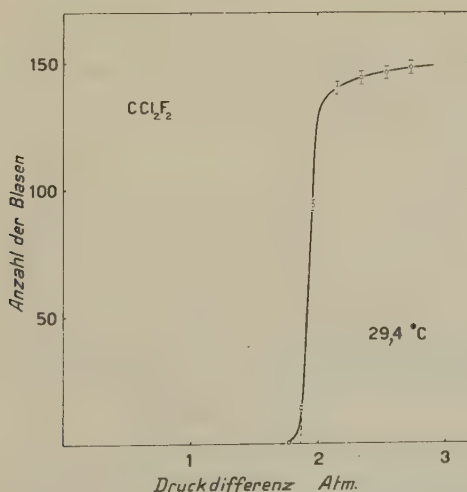


Fig. 1

Blasenbildung beim  $\alpha$ -Zerfall ( $^{210}\text{Po}$ ) als Funktion der Druckdifferenz

Wie aus Figur 2 zu ersehen ist, nimmt dieser Grenzdruck (dargestellt ist der extrapolierte Wert) mit wachsender Temperatur ab. Er ist ca. 7mal kleiner als der für Blasenbildung an Elektronen erforderliche  $\Delta p$ -Wert, der zum Beispiel für eine Blasendichte von  $10 \text{ cm}^{-1}$  bei  $72^\circ\text{C}$  6,8 at beträgt.

Der aus den Daten von Figur 2 errechnete kritische Radius ergibt sich zu etwa  $900 \text{ \AA}$  bei  $26^\circ\text{C}$ . Damit wird zur Bildung eines kritischen Volu-

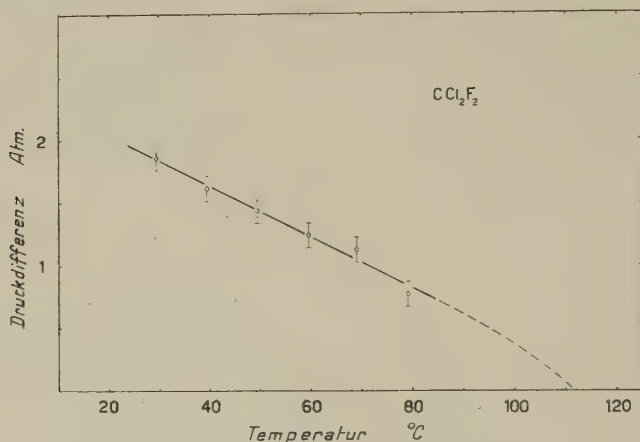


Fig. 2

Zur Blasenbildung erforderliche Druckdifferenz ( $\alpha$  von 5,3 MeV) als Funktion der Temperatur

mens eine Energie von 112 keV benötigt, die sich aus einem Oberflächen-term von 5,7 keV, einem pV-Term von  $-3,8 \text{ keV}$  und einem Verdampfungsterm von 110 keV zusammensetzt. Dieser letzte Term wird erforderlich, falls die subkritische Blase schneller wächst als Energie aus der Umgebung nachgeliefert werden kann.

Aus den bisherigen Messungen geht nicht hervor, ob beim Zerfall von  $^{210}\text{Po}$  das  $\alpha$ -Teilchen selbst oder der Rückstosskern für die Blasenbildung verantwortlich ist. In beiden Fällen ist die in einem kritischen Volumen abgegebene Energie von der gleichen Grössenordnung, nämlich ca. 40 keV im Maximum der Bragg-Kurve für das  $\alpha$ -Teilchen und ca. 100 keV für den Rückstosskern. Die Energiebilanz stimmt also – was die Grössenordnung betrifft – falls der Verdampfungsterm hinzugerechnet wird.

In ähnlicher Weise wie beim  $\alpha$ -Zerfall lassen sich auch für minimum ionisierende Elektronen die Zusammenhänge zwischen den interessierenden Grössen bestimmen, nur dass hier als weiterer Parameter die Blasendichte hinzukommt.

Einige der für  $\text{CBrF}_3$  erhaltenen Beziehungen sind in Figur 3 wiedergegeben, aus denen sich Kurven – entsprechend wie in Figur 2 – mit der Blasendichte als Parameter darstellen lassen. Auch hier kann man den kritischen Radius bestimmen und eine Energiebilanz aufstellen. Da aber

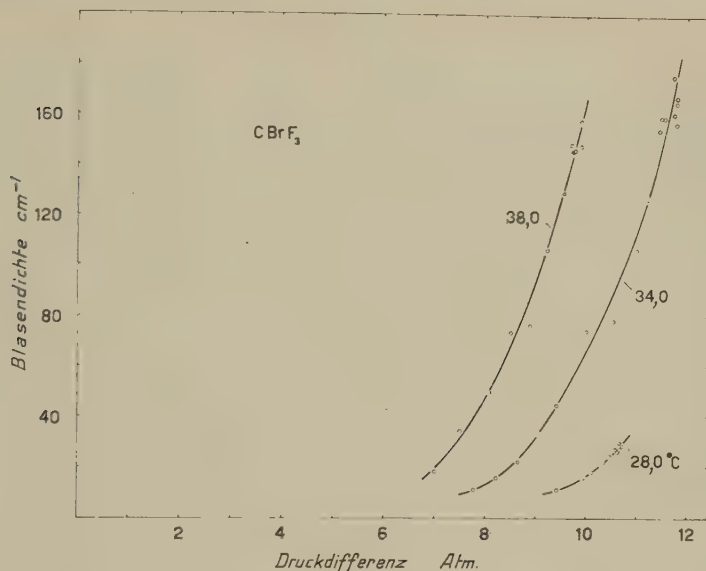


Fig. 3  
Blasenbildung an Elektronen (31 MeV)

die räumliche Verteilung des Energieverlustes von Elektronen wenig übersichtlich ist, bedarf es noch weiterer Untersuchungen, bevor etwas ausgesagt werden kann.

#### Literatur

- <sup>1)</sup> Siehe z. B. F. SEITZ, *Phys. of Fluids* **1**, 1 (1958). – L. BERTANZA *et al.*, *Nuovo Cimento* **10**, 940 (1957).

### Wechselwirkung von Bevatron-Protonen (6,2 BeV) in Kernemulsionen

VON WINZELER, KLAIBER, KOCH, NIKOLIĆ und M. SCHNEEBERGER  
(Physikalisches Institut Bern)

Wird publiziert im «Nuovo Cimento».



**An External Proton Beam at the CERN Proton Synchrotron**

by B. DAYTON, W. KOCH, M. NIKOLIĆ, and H. WINZELER

(Physikalisches Institut der Universität Bern)

J. COMBE, W. M. GIBSON, W. O. LOCK, M. SCHNEEBERGER, and G. VANDERHAEGE  
(CERN)

This beam consists mainly of orbit protons<sup>1</sup>) elastically scattered out through  $1.5^\circ$  in a target, which then emerge through the wall of the vacuum chamber and follow an external orbit of many meters through the fringing field of the magnet, thus serving to separate them from other secondary particles and from inelastically scattered protons. Since the intensity of the fringing field is approximately proportional to the momentum of the protons in orbit, the external trajectories of the scattered protons are practically independent of the energy at which the synchrotron is operated.

Trajectories in the horizontal plane have been calculated on the CERN 'Mercury' computer<sup>2</sup>) and show a moderate defocussing, such that the virtual target is about 6 meters forward of the actual target. The vertical motion has been obtained for three of these trajectories by graphical piece-wise integration, all of which show positive focussing. Protons scattered laterally through 14, 17.6 and 22 milliradians are brought to a focus at 16, 19.8, and 33 m, respectively. These three focal points lie on a straight line so that one may interpolate for other trajectories with some confidence.

To check these predictions about particle directions various 50 micron thick test emulsions (G-5) were placed in arrays at several distances from the target. In each such plate the measured angular distribution of straight, minimum ionizing tracks consists of a sharp peak (almost a delta-function) superposed on a broad background. These tracks lying within the sharp peak have been analyzed with respect to: their horizontal angular distribution, their dip distribution, the absolute mean angle with the orbit, and the spatial distributions of the flux densities.

Figure 1a shows the horizontal distributions of flux density (expressed with respect to the scattering angle) measured at 19, 25, and 37 m from the target, the last distance being at the machine side of the main shielding wall. Here the concentration of the particles by the vertical focussing is clearly shown. At the 19 m distance the observed focal point is 17 mr, precisely the computed value. At 25 m the observed maximum corre-

<sup>1</sup>) About 60 % (COCCONI, WETHERELL, DIDDENS: private communication August 1960).

<sup>2</sup>) Provided by G. PLASS, CERN.

sponds to a scattering angle 1 mr greater than the predicted value. At 37 m the peak is too broad to invite a similar comparison.

Figure 1b gives, with limited statistics, four vertical profiles of the scattered proton flux at the 37 m distance. The most nearly parallel beam

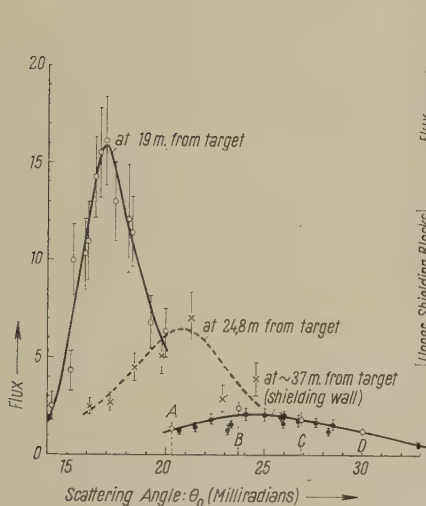


Fig. 1a

Scattered-Proton Flux vs. Scattering Angle (Particles/cm<sup>2</sup> per 10<sup>7</sup> protons in orbit)

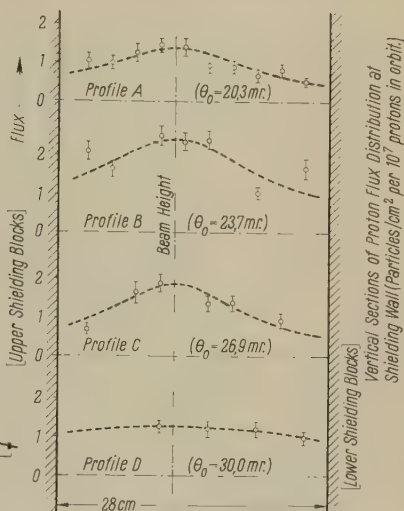


Fig. 1b

Scattered-Proton Flux vs. Height

(i.e. where the vertical focus is at infinity) should correspond to a scattering angle of about 28 mr.

Figure 2 is a target diagram showing the relative directions in space of 67 tracks observed at the shielding wall in the location adopted for the collimator. In this case one-half of the tracks lie within a space angle of 1 milliradian from the average direction.

Since a collimator has been opened through the shielding wall, arrays of test plates have been exposed at approximately 50 and 90 m from the target in the main experimental hall. Preliminary measurements indicate that the intensity of this beam (which is now limited to a 10 cm width at the entrance to the collimator) is as high as 4000 protons/cm<sup>2</sup> per pulse at the 90 m distance. Again, preliminary results are that the angular resolution may be considerably better than that shown in Figure 2.

The present collimator can certainly be refined to provide a lower intensity beam of smaller cross-section. Undoubtedly the beam could

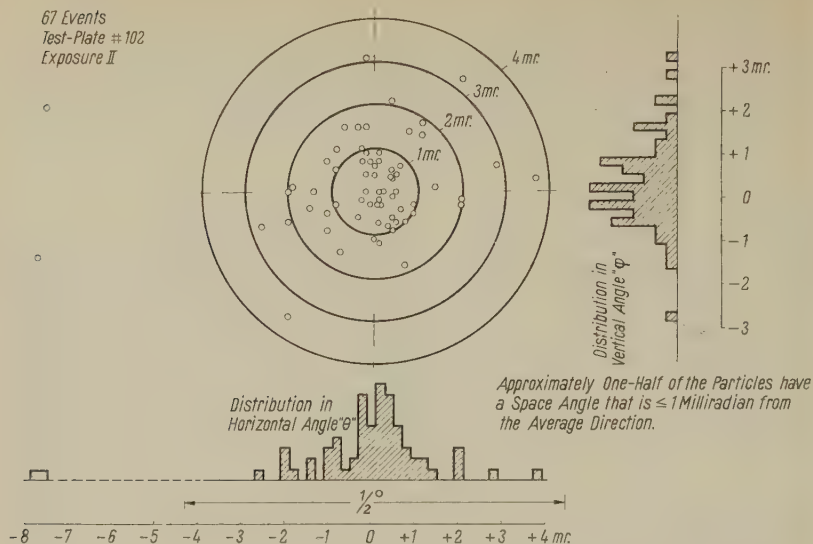


Fig. 2

*Target Diagram Showing Angular Distribution in Space of Scattered 24 GeV Protons in Proposed Beam (Measured at entrance to new collimator through the shielding wall. Corresponds to elastic scattering in target of 25.7 mr.).*

be transported into the experimental hall with a much higher intensity by means of quadripole lenses, suitably correcting for astigmatism.

The above is an abstract of a paper presented by B. DAYTON on 7 May 1960 in Winterthur, Schweizerische Physikalische Gesellschaft.

### **Vorläufige Resultate über Wechselwirkungen von PS-Protonen in Kernemulsionen**

von G. CVIJANOVICH, B. DAYTON, P. EGLI, B. KLAIBER, W. KOCH, M. NIKOLIĆ,  
R. SCHNEEBERGER und H. WINZELER

(Physikalisches Institut der Universität Bern)

J. C. COMBE, W. M. GIBSON, W. O. LOCK, M. SCHNEEBERGER und  
G. VANDERHAEGHE (CERN)

Es wurden 185,3 m Spur von PS-Protonen\* in Kernemulsionen verfolgt, und 491 Wechselwirkungen mit Kernen sind dabei gefunden worden. Hieraus ergibt sich eine mittlere freie Weglänge für Sternproduktion von  $37,8 \pm 2,7$  cm (Emulsionstyp: Ilford G 5). Dieser Wert unter-

\*) Wie die inzwischen von G. COCCONI *et al* durchgeführte Impulsanalyse ergeben hat, war die mittlere Energie hier 21 BeV.

scheidet sich innerhalb der Fehlergrenzen nicht von den bei 6,2 BeV und 10 BeV gefundenen.

Figur 1a gibt die Häufigkeitsverteilung der Sterne als Funktion der Anzahl der von ihnen emittierten grauen und schwarzen Spuren (gekenn-

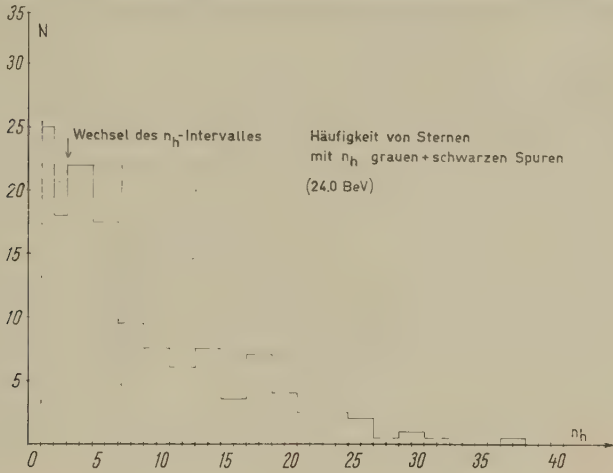


Fig. 1a

zeichnet durch  $n_h$ ) wieder. Grösstenteils können diese Spuren den Verdampfungsprodukten zugeordnet werden. Zum Vergleich zeigt Figur 1b die entsprechende Verteilung bei 6,2 BeV. Beide Figuren sehen sehr ähn-

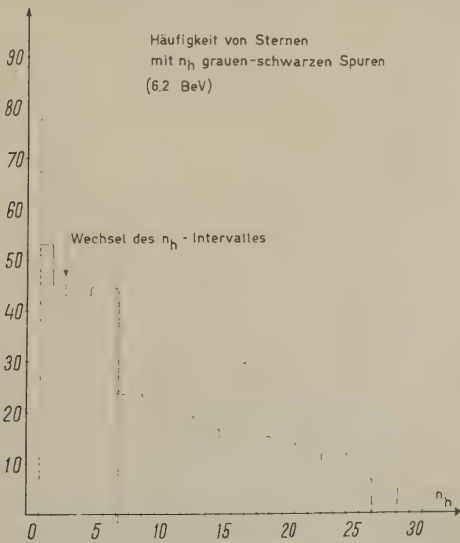


Fig. 1b

lich aus, was den Schluss zulässt, dass im Energieintervall zwischen 6 und 24 BeV die Anzahl der Verdampfungsspuren praktisch unabhängig von der Primärenergie ist. Dies wiederum deutet an, dass auch der in Kernverdampfung gehende Betrag an Energie jedenfalls oberhalb 6 BeV nahezu konstant ist. Die Anzahl der Verdampfungsspuren ist also dort kein Mass mehr für die Primärenergie. Die Form der Verteilungen scheint durch die atomare Zusammensetzung der Emulsion bestimmt zu sein. (Ag- und Br-Kerne für  $n_h \geq 7$ , siehe Figuren.)

12,4% von allen Wechselwirkungen erscheinen als sogenannte «weisse Sterne», das sind Sterne mit nur dünnen Sekundärspuren. In der Figur 1 sind diese Sterne mit  $n_h = 0$  nicht eingezeichnet. Weissе Sterne geben am ehesten Aufschluss über die Mesonenproduktion in Proton-Nukleon-Wechselwirkungen, da bei ihnen die Verfälschung von Winkel- und Energieverteilungen durch Sekundärprozesse in denselben Kernen am geringsten ist. (Siehe hierzu später Bemerkungen zu Figuren 3a und b.)

Figur 2 zeigt die Häufigkeitsverteilung der weissen Sterne als Funktion der Anzahl ihrer geladenen Sekundärspuren. Unter den 31 Sternen mit

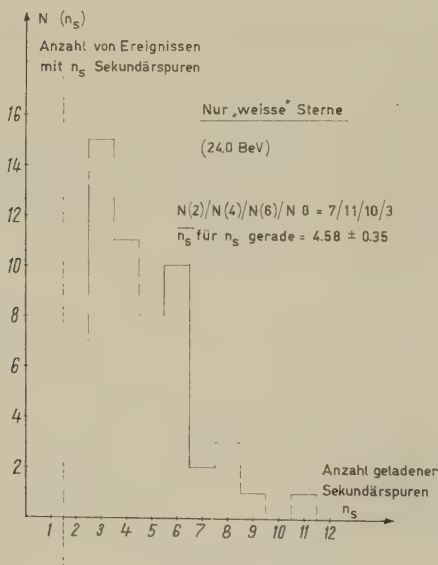


Fig. 2

gerader Anzahl von Sekundärspuren muss ein grösserer Bruchteil zu Ereignissen gehören bei denen das primäre Proton mit einem Wasserstoff-Kern kollidierte und hierbei Sekundärteilchen erzeugte. Diese  $p$ - $f$ - $p$ -Kollisionen («proton-free-proton»-Kollisionen) führen aus Gründen der Ladungserhaltung immer zu einer geraden Anzahl von Sekundärspuren.



In erster grober Näherung ergibt sich somit aus den geradspurigen weissen Sternen die mittlere Multiplizität in  $p$ - $f$ - $p$ -Kollisionen bei 21 BeV kinetischer Primärenergie zu  $4,58 \pm 0,35$ . Dies stimmt innerhalb der Fehlergrenzen mit dem aus der Fermi-Theorie berechneten Wert von 4,7 überein. Es ist jedoch damit zu rechnen, dass noch einige der  $p$ - $f$ - $p$ -Wechselwirkungen noch eine graue ( $n_h = 1$ ) Spur zeigen. Diese Ereignisse sind in unserer vorläufigen Analyse nicht mitenthalten. Bei richtiger Auswertung könnte die mittlere Multiplizität dadurch etwas kleiner werden.

Die Figuren 3a und b zeigen die Winkelverteilungen der Sekundärspuren im  $L$ -System (gemessen gegen die Primärrichtung). Die ungerad-

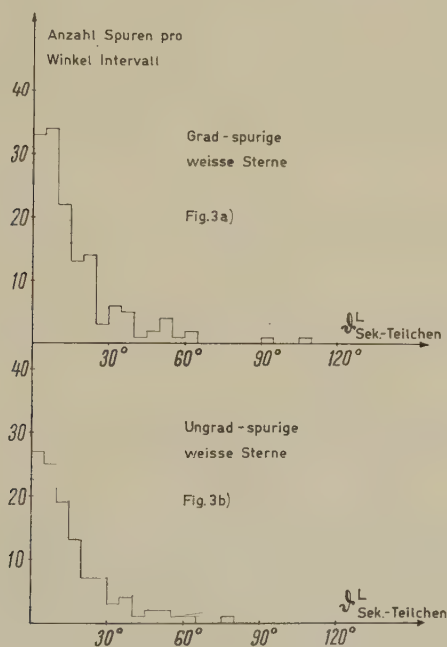


Fig. 3a und 3b

spurigen weissen Sterne müssen sicher zu Kollisionen mit gebundenen Nukleonen gehören (wahrscheinlich meist zu Proton-Neutron-Kollisionen). Die Ähnlichkeit beider Winkelverteilungen deutet an, dass bei den weissen Sternen die Winkelverfälschung durch Sekundärwechselwirkungen klein ist. Dieser Schluss bedarf noch besserer statistischer Untermauerung.

Figur 4 zeigt als letzte die Winkelverteilung der Sekundärspuren im Schwerpunktsystem der Proton-Nukleon-Kollision für 4- und 6-spurige

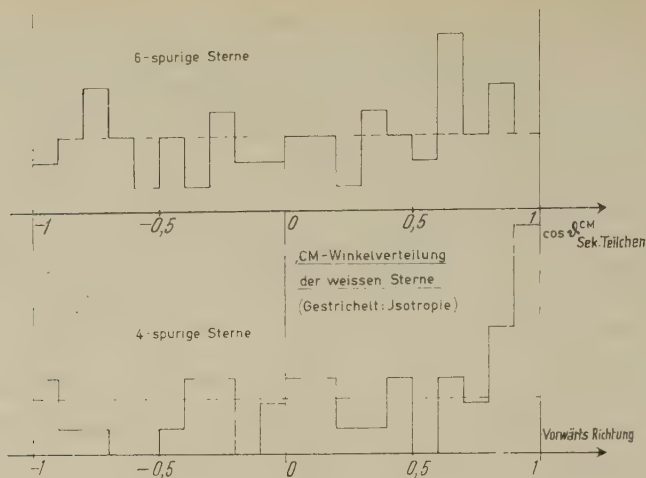


Fig. 4

weisse Sterne. Für die Umrechnung von Labor- in Schwerpunktswinkel wurde folgende Beziehung verwendet:

$$A) \quad \operatorname{tg} \vartheta^L = 1/\gamma_{CM}^L \cdot \operatorname{tg} \vartheta^{CM}/2 \quad \left\{ \gamma = \frac{1}{\sqrt{1-\beta^2}} \right\}$$

Sie gilt nur approximativ. Die allgemeine Beziehung lautet:

$$B) \quad \operatorname{tg} \vartheta^L = d/\gamma_{CM}^L \frac{\sin \vartheta^{CM}}{\cos \vartheta^{CM} + \beta_{CM}^L/\beta_{\text{sek. part.}}^{CM}}$$

Für  $\beta_{CM}^L = \beta_{\text{sek. p.}}^{CM}$ -Teilchen geht B) in A) über. Die scheinbare Vor-Rück-Asymmetrie bei den 4-spürigen Sternen deutet darauf hin, dass die mittlere Geschwindigkeit der Sekundärteilchen im Schwerpunktsystem kleiner ist als die Geschwindigkeit des Schwerpunkts im Laborsystem. Diese Aussage ist statistisch nicht sehr gesichert, doch folgt sie mit dem Fermi-modell der Teilchenerzeugung auch theoretisch.

## Hypernuclei Produced by $K^-$ -Interactions in Nuclear Emulsions General Characteristics and Non-Mesic Decays

VON V. GORGÉ, W. KOCH, W. LINDT, M. NIKOLIĆ, S. SUBOTIĆ-NIKOLIĆ,  
and H. WINZELER

(Physikalisches Institut und Seminar für theoretische Physik  
der Universität Bern)

### *Abstract*

A systematic study was made of non-mesic hypernuclei detected during the search for double stars produced by  $K^-$ -interactions ( $T_K \sim 85 \text{ MeV}$ ) at rest and in flight in nuclear emulsions.

Profile measurements, constant sagitta and other measurements were made for prong identifications whenever possible. In a kinematic analysis of possible combinations the Bull Gamma-3 Computer was used.

44 and 17 possible hyperfragments were found in examining 1104  $K^-$ -interactions at rest and 415  $K^-$ -interactions in flight, respectively. This analysis is in progress.

General characteristics of both mesic and non-mesic hypernuclei were considered.

The complete analysis will be submitted to Nuclear Physics.

## $p$ - $n$ -Übergänge als Festkörper-Ionisations-Kammern

VON E. BALDINGER, W. CZAJA und A. Z. FAROOQI\*)

(Universität Basel\*\*)

Es ist bekannt, dass sich Halbleiter-Dioden als Detektoren für schnelle geladene Teilchen eignen<sup>1)2)3)4)</sup>. Über ihre Verwendung als Energie-Spektrometer hoher Auflösung ist ebenfalls schon berichtet worden<sup>5)</sup>.

Die in einem Si- oder Ge-Einkristall eindringenden schnellen geladenen Partikel verlieren ihre Energie, wobei gleichzeitig eine Anzahl Elektronen-Lochpaare gebildet werden. Verläuft die Teilchenspur in der Raumladungszone einer  $p$ - $n$ -Diode, so werden die gebildeten Ladungsträger durch das dort herrschende elektrische Feld gesammelt und erscheinen an den Elektroden als Ladung, die ballistisch gemessen werden kann<sup>6)</sup>. Wie in Gas-Jonisationskammern nehmen die Rekombinationsverluste im «Kammervolumen» mit wachsender, an den Elektroden angelegter Sperrspannung ab. Die Impulshöhe als Funktion der angelegten Spannung

\*) On leave from Sind-University, Hyderabad, W-Pakistan.

\*\*) Institut für angewandte Physik.

weist eine Sättigung auf, und es sind Anstiegszeiten der Impulse von weniger als  $10^{-8}$  sec. berichtet worden<sup>7) 2)</sup>. Im «Jonisationskammer-Bereich» werden diese Dioden mit einigen Volt-Sperrspannung betrieben, liefern aber bereits ohne Sperrspannung Impulse in unserem Beispiel von etwa 0,5 mV für 5 MeV  $\alpha$ -Teilchen. Es erhebt sich die Frage, ob die Analogie zwischen Gas- und Festkörper-Jonisationskammern über diese allgemeinen Feststellungen hinaus auch zu einem genaueren Verständnis der Halbleiter-Detektoren führen kann.

Für Parallel-Platten-Jonisationskammern mit Jonensammlung gilt bekanntlich zwischen der gesammelten Ladung  $Q$  und der Feldstärke  $E$  der experimentell gesicherte lineare Zusammenhang<sup>6) 8)</sup>,

$$\frac{1}{Q} = \frac{1}{Q_{\text{sätt}}} \left( 1 + \frac{\text{const}}{E} \right) \quad (1)$$

( $Q_{\text{sätt}}$  = «Sättigungsladung», die man durch Extrapolation  $E \rightarrow \infty$  erhält) Figur 1.

Die einer Gas-Jonisationskammer äquivalente Halbleiter-Anordnung ist ein homogener Einkristall (z. B. Si), dessen Widerstand sehr hoch ist,

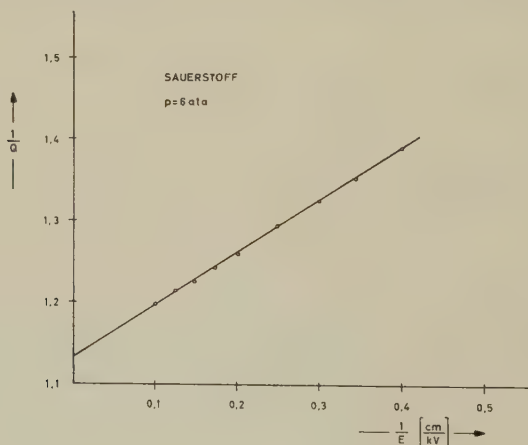


Fig. 1

Sättigungsgerade für  $O_2$  vgl. <sup>6)</sup>.

was sich durch passende Dotierung und den Betrieb bei tiefen Temperaturen erreichen lässt. Die von DAVIS<sup>3)</sup> in einem derartigen Experiment bestimmten Daten kann man ebenfalls nach (1) darstellen (Fig. 2). Dies stimmt mit einfachen theoretischen Überlegungen überein und erlaubt uns (1) auch für Rekombinationsverluste in Halbleiter-Zählern anzuwenden.

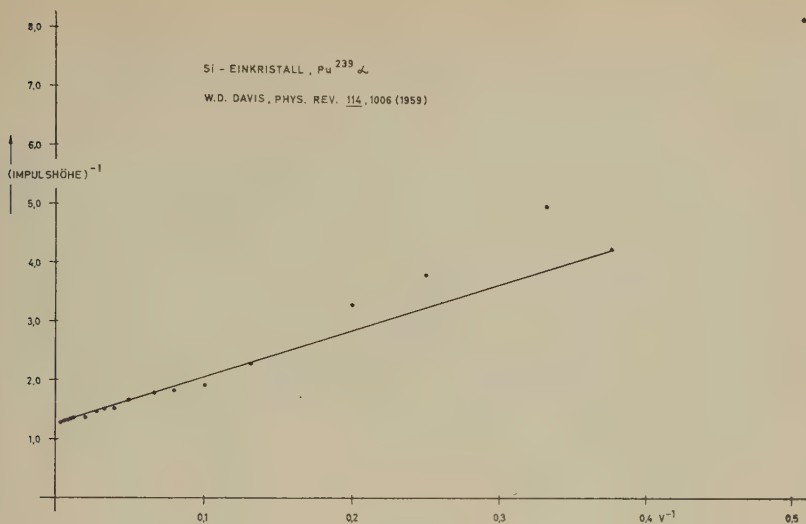


Fig. 2

Sättigungsgerade für einen Si-Einkristallzähler. Reziproke Impulshöhe als Fktn. der reziproken Sperrspannung.

Das Verhalten von *p-n*-Flächendioden als Detektoren ist dagegen verwickelter. Die Grösse der gesammelten Ladung als Funktion der an die Diode angelegten Sperrspannung  $U$ , wird durch drei Effekte beeinflusst:

1. Variation der Junction-Kapazität (Kammer-Kapazität) mit  $U$ .
2. Variation der Rekombinationsverluste mit  $U$ .
3. Variation der Spurlänge im «aktiven Volumen» als Folge der Verbreiterung der Raumladungszone (aktives Volumen) mit  $U$ .

Zur Abklärung des Einflusses dieser drei Beiträge haben wir an einer Si-*p-s-n*-Diode\*) als Detektor für Po- $\alpha$ -Strahlen Messungen ausgeführt. Die zu den Messungen verwendete Apparatur ist einschliesslich der Einrichtung zur Ladungseichung der in <sup>6)</sup> beschriebenen äquivalent (Verstärker-Zeitkonstante  $3\ \mu\text{s}$ \*\*)).

In Figur 3 ist die gesamte Eingangskapazität als Funktion von  $U$  aufgetragen. Die Diodenkapazität variiert annähernd wie  $U^{-1/3}$ , die Diode verhält sich also praktisch wie eine «graded junction»<sup>9)</sup>.

\*) Wir danken Herrn Dr. H. D. ENGLER, Forschungslabor der Siemens-Schuckert-Werke AG., Erlangen für die zur Verfügung gestellten Si-*p-s-n*-Dioden.

\*\*) Herr Prof. Dr. P. HUBER, Physikalische Anstalt, hat uns für diese Messungen dankenswerter Weise einen RCL-256-Kanal-Impuls-Spektrograph zur Verfügung gestellt. Herrn Dr. R. WAGNER danken wir für die Mithilfe bei den Messungen.



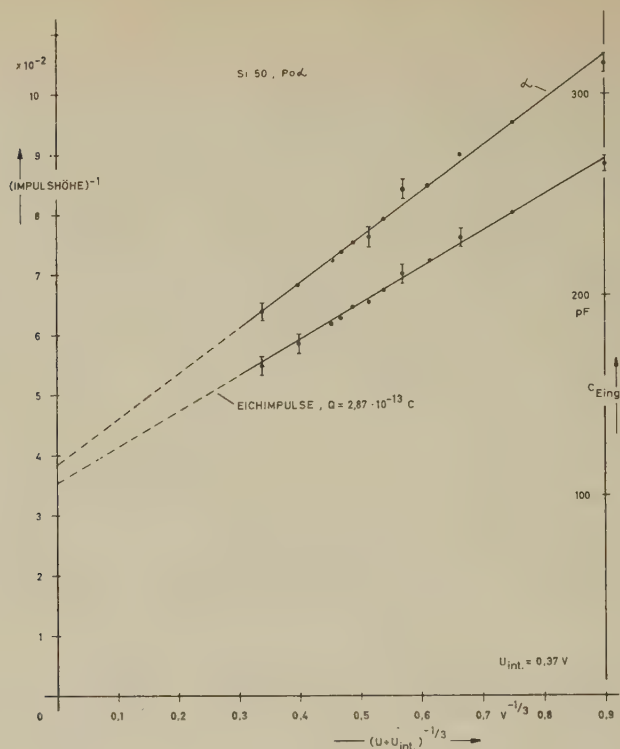


Fig. 3

Kapazität und reziproke Impulshöhe für  $\alpha$ -Teilchen-Impulse einer Si- $p$ - $s$ - $n$ -Zähl-diode. Messungen bei Raumtemperatur. Das Kontaktpotential der Diode  $U_{\text{int}}$  wurde aus der Bedingung bestimmt, dass die Messpunkte bei kleinen Vorspannungen ebenfalls auf der Geraden liegen. Der so gewonnene Wert ist plausibel.

Vernachlässigt man Rekombinationsverluste und den Einfluss der Spurlängen-Änderung, so erwartet man wegen

$$C = C_0 \left( 1 + \frac{\gamma}{U^{1/3}} \right) \quad (2)$$

für die reziproke Amplitude  $A$  der Impulse der  $\alpha$ -Teilchen

$$\frac{1}{A} = \frac{C_0}{Q} \left( 1 + \frac{\gamma}{U^{1/3}} \right). \quad (3)$$

(2) und (3) weisen dieselbe funktionelle Abhängigkeit von  $U$  auf. Die eingeführte Voraussetzung ist im Experiment in recht guter Näherung erfüllt (Fig. 3) woraus wir schliessen, dass der Haupteinfluss der bei den  $p$ - $n$ -Dioden-Detektoren zu beobachtenden «Sättigungserscheinung» auf

die Variation der Kapazität der Diode mit der Spannung  $U$  zurückzuführen ist. Ferner sind die Rekombinationsverluste klein, und es ändert sich die Spurlänge im Zählvolumen nur wenig. Da die Breite der Raumladungszone mit  $(U)^{1/3}$  zunimmt, weist die angenäherte Konstanz der Spurlänge im Zählvolumen darauf hin, dass die Diffusion von den Randgebieten merklich zur gesammelten Ladung beiträgt<sup>4</sup>). Aus den in Figur 3 eingezeichneten Geraden kann weiter die Beziehung  $1/Q = f(U)$  ermittelt werden. Diese «Sättigungskurve» enthält nun den Anteil der Kapazität nicht mehr. Wäre kein Einfluss der Spurlängen-Variation mit  $U$  zu erwarten, also nur Rekombinationsverluste vorhanden, so müsste nach sinngemässer Übertragung von (1) ( $E \sim U^{2/3}$ ) in Figur 4 eine Gerade positiver Neigung erscheinen. Innerhalb der Messgenauigkeit scheint dies der Fall zu sein. Zur Trennung dieser beiden Anteile sind genauere Mes-

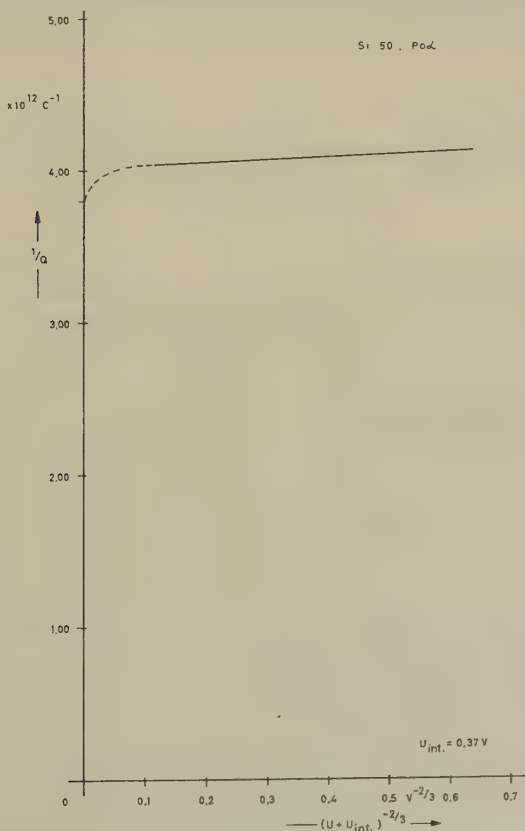


Fig. 4

Sättigungskurve für eine Si-p-s-n-Zähldiode  
Der -----Teil der Kurven entspricht dem in Fig. 3

sungen notwendig. Mit diesem Vorbehalt lässt sich bei geeigneter Interpretation aus dieser Figur eine untere Grenze (Schnittpunkt mit der Ordinate) sowie eine obere Grenze (Extrapolation des praktisch linearen Teils der Kurve) für die Sättigungsladung und damit für die Arbeit pro Elektron-Loch-Paar  $\epsilon$  in Si bestimmen.

$$3,16 \text{ eV} \leq \epsilon \leq 3,30 \text{ eV} \quad \pm 0,15 \text{ eV}$$

Die obere Grenze von  $\epsilon$  liegt 10% tiefer als der in der Literatur angegebene Wert, was eventuell mit der von uns verbesserten Bestimmung der Sättigungsladung zusammenhängen kann.

Die hier aufgezeigten Überlegungen liefern ganz entsprechende Resultate auch für Dioden anderen Typs (z. B. Au-Ge-Dioden<sup>2)</sup>). Bei der Interpretation der Figur 5 ist zu beachten, dass man für die Kapazität der dort verwendeten Diode eine Variation mit  $U^{-1/2}$  anstatt wie in (2) mit  $U^{-1,3}$  zu erwarten hat.

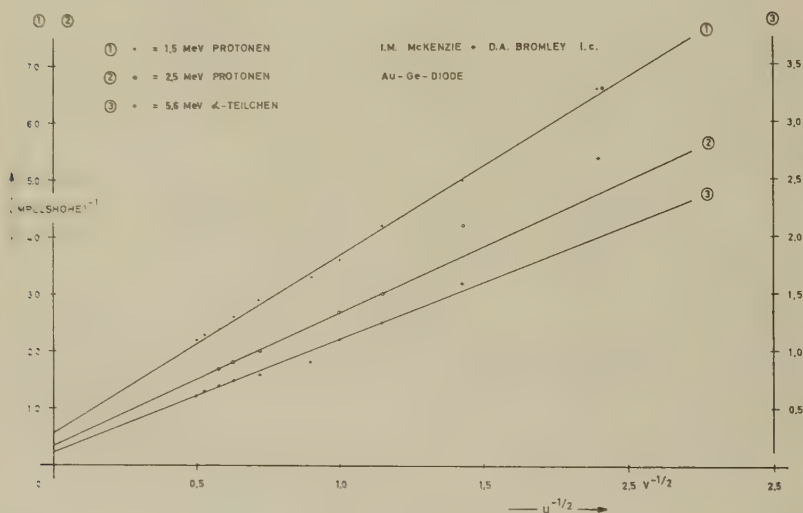


Fig. 5

Reziproke Impulshöhe als Funktion der (Sperrspannung)<sup>-1/2</sup> für Au-Ge-Zähldioden<sup>2)</sup>

Dem Schweizerischen Nationalfonds sowie der Stiftung Hasler-Werke Bern, gebührt unser Dank für die finanzielle Unterstützung dieser Untersuchungen.

#### Literatur

- <sup>1)</sup> K. G. McKAY, Phys. Rev. 84, 827 (1951). — K. G. McKAY, K. B. McAfee, Phys. Rev. 91, 1079 (1953). — J. Mayer, B. Gessick, Rev. Sci. Instr. 27, 407 (1956). — J. W. T. Dabbs, F. J. Walter, L. D. Roberts, ORNL-2501, p. 73 (1958). — A. V. Airopetians, S. M. Rykin, Zh. tekh. Fiz. 27, 95 (1957). übersetzt in Sov. Techn. Phys. (1957). — R. Bomal, L. Koch, Nguyen Van Dongh,

- C. SCHNEIDER, l'électronique nucléaire, Vol. 1, IAEA, Wien (1959). — J. W. MAYER, J. Appl. Phys. *30* 1937 (1959).
- H. D. ENGLER, Z. Naturf. *15a*, 82 (1960). — S. S. FRIEDLAND, J. W. MAYER, J. M. DENNEY, F. KEYWELL, Rev. Sci. Instr. *31*, 74 (1960). — S. S. FRIEDLAND, J. W. MAYER, J. S. WIGGINS, Nucl. *78*, Febr. 54 (1960).
- <sup>2</sup>) I. M. MCKENZIE, D. A. BROMLEY, AEC, Canada Rep. 726 (1959).
- <sup>3</sup>) W. D. DAVIS, Phys. Rev. *114*, 1006 (1959).
- <sup>4</sup>) Electronics *33*, Nr. 17, 74 (1960).
- <sup>5</sup>) Vgl. z. B. D. A. BROMLEY, J. A. KUEHNER, E. ALMQVIST, Phys. Rev. Letters *4*, 365 (1960).
- <sup>6</sup>) W. HAEBERLI, P. HUBER, E. BALDINGER, Helv. Phys. Acta *26*, 145 (1953). — E. BALDINGER, W. HAEBERLI, Ergeb. ex. Naturwiss. *27*, ... (1953).
- <sup>7</sup>) K. G. MCKAY, K. B. McAFEE, Phys. Rev. *91*, 1079 (1953).
- <sup>8</sup>) F. WIDDER, P. HUBER, Helv. Phys. Acta *31*, 601 (1958).
- <sup>9</sup>) Vgl. z. B. W. SHOCKLEY, Bell Syst. Techn. Journ. *28*, 435 (1949). — D. DEWITT, A. L. ROSOFF; Transistor Electronics McGraw-Hill N. Y. (1957).

## Mesure et discrimination de la radioactivité des cadrans lumineux. Dose-gonades

par G. JOYET, Zurich

Le rayonnement de 250 cadrans lumineux de montres-bracelet et de 80 révéils a été mesuré et analysé, d'une part à l'aide d'un compteur à scintillation NaJ(Tl) muni d'un discriminateur à seuil pour le rayonnement  $\gamma$ , et d'autre part à l'aide d'un compteur de Geiger muni d'écrans d'aluminium pour la mesure du rayonnement  $\beta$ . Le discriminateur à seuil permet de distinguer le rayonnement  $\gamma$  des dérivés du radium des rayonnements d'autres radioéléments tels que  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  ou le rayonnement de freinage de  $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ . La courbe d'absorption  $\beta$ , dans une géométrie déterminée, permet de distinguer le radium et ses dérivés du  $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ , ou éventuellement d'un mélange de ces deux séries radioactives. Par ailleurs, malgré les variations d'autoabsorption de la couche active et les variations d'épaisseur du verre, l'activité  $\beta$  par microcurie équivalent de rayonnement  $\gamma$  du radium,  $\beta/\mu\text{C Ra}$ , reste, pour chaque radioélément d'activation du ZnS, dans des limites distinctes. Le tableau suivant illustre, par quelques exemples, les résultats des mesures. Pour le radium et ses dérivés, le rapport des mesures de scintillation entre deux positions  $D_r$  et  $D_0$  du seuil du discriminateur reste compris entre 0,25 et 0,28 et l'activité  $\beta/\mu\text{C Ra}$  entre 8000 et 28000  $\text{min}^{-1}$ . Pour les montres Mir. et Gir.-Per., le rayonnement  $\gamma$  n'est plus celui du radium pur et l'activité  $\beta/\mu\text{C}$ , très élevée, correspond, ainsi que l'indique la courbe d'absorption  $\beta$ , à du  $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$  additionné d'un émetteur  $\gamma$  non identifié.

Tableau

Marque et diam.	Activité $\gamma$		Micro-curie	Activité $\beta$	
	I. min <sup>-1</sup>	$D_x:D_0$		I. min <sup>-1</sup>	$\beta/\mu\text{C Ra}$
<i>Montres d'Hommes</i>					
Omega 30 mm . . .	1 313	0,26 <sub>4</sub>	0,22 <sub>6</sub> Ra	3 000	13 300
Tissot 28,5 mm . .	615	0,26 <sub>0</sub>	0,10 <sub>8</sub> Ra	1 100	10 400
Mido 27 mm . . .	1 815	0,26 <sub>6</sub>	0,31 <sub>2</sub> Ra	3 350	10 700
Du Bois 27,5 mm .	1 600	0,27 <sub>4</sub>	0,27 <sub>5</sub> Ra	4 145	15 100
Pon. nag. 28 mm .	25 960	0,26 <sub>6</sub>	4,46 Ra	55 500	12 550
Mira 28,5 mm . . .	212	0,11 <sub>8</sub>	—	36 500	1 000 000
<i>Montres de Dames</i>					
IWC 18 mm . . . .	823	0,25 <sub>2</sub>	0,14 <sub>8</sub> Ra	2 750	18 600
Cyma 18,5 mm . .	1 230	0,26 <sub>8</sub>	0,21 <sub>2</sub> Ra	2 700	12 700
Türler 15 mm . . .	250	0,26 <sub>8</sub>	0,04 <sub>5</sub> Ra	570	12 700
Gir.-Per. 17,5 mm .	129	0,24	—	6 400	290 000

Dans cette première statistique, 94% des montres usagées sont activées avec du radium pratiquement pur, 1,6% avec un mélange de strontium et de radium et 2% avec du  $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$  pratiquement pur. Les valeurs moyennes des activités des montres mesurées chargées avec du radium sont pour

l'homme ( $m = \text{man}$ ),

$$A^m = 0,14 \mu\text{C Ra}$$

et pour la femme ( $w = \text{woman}$ ),

$$A^w = 0,06_4 \mu\text{C Ra}.$$

Dans une expérience décrite antérieurement<sup>1)</sup>, nous avons, chez 24 volontaires hommes, et femmes, déterminé le rapport entre l'activité du radium portée au poignet et la dose annuelle de rayonnement  $\gamma D_1$  reçue par les ovaires ou les testicules. Les résultats pour l'homme et pour la femme sont les suivants:

$$D_1^m = 70 \text{ mr} \pm 12\%$$

Doses-gonades annuelles pour 1  $\mu\text{C}$  de Radium

$$D_1^w = 65 \text{ mr} \pm 15\%$$

lorsque la montre est portée jour et nuit.

Enfin, à l'aide d'un millier de questionnaires remplis par des fractions représentatives de la population, nous avons déterminé, en fonction de l'âge, la proportion  $W_y^m$  et  $W_y^w$  des hommes et des femmes qui, à l'âge  $y$  sont porteurs d'un cadran lumineux. (A 50 ans, 65% des hommes et 21% des femmes sont porteurs d'un tel cadran et 68% des hommes et des femmes emploient un réveil lumineux).



La dose de rayonnement dite «génétique» issue d'une telle irradiation de l'homme<sup>2)</sup> est formée de deux termes: l'un provenant de l'irradiation de la mère depuis la conception de celle-ci jusqu'au moment où une ovule déterminée est fécondée, l'autre provenant du père irradié depuis sa conception jusqu'au moment de la fécondation considérée.

La dose de rayonnement ainsi reçue par les ovaires de la mère est égale à

$$A^w D_1^w \int_0^y W_y^w dy$$

et pour les testicules du père

$$A^m D_1^m \int_0^y W_y^m dy$$

Durant l'année d'âge  $y$ , la probabilité pour la mère d'engendrer un garçon ou une fille est égale à

$$P_y^w$$

et pour le père

$$P_{y-4}^w$$

si l'on admet que ces probabilités sont égales pour le père et la mère respectivement aux âges  $y+4$  et  $y$ . (On admet qu'à la conception le père est systématiquement de 4 ans plus âgé que la mère).

Pour une mère «moyenne», les gamètes féminines fécondées reçoivent la dose de rayonnement

$$A^w D_1^w \int_0^{\omega} P_y^w dy \int_0^y W_y^w dy$$

et les gamètes masculines correspondantes la dose

$$A^m D_1^m \int_0^{\omega} P_{y-4}^w dy \int_0^y W_y^m dy$$

Et la dose génétiquement déterminante par enfant et par génération est égale à

$$\frac{A^w D_1^w \int_0^{\omega} P_y^w dy \int_0^y W_y^w dy + A^m D_1^m \int_0^{\omega} P_{y-4}^m dy \int_0^y W_y^m dy}{\int_0^{\omega} P_y^w dy} \quad (1)$$

où le dénominateur représente le «taux brut de reproduction» utilisé en statistique démographique et  $\omega$  la fin de la période de reproduction.

En introduisant dans la formule (1) les fonctions  $W_1^{av}$  et  $W_v^{av}$ , ainsi que les valeurs de  $A^w$ ,  $A^m$ ,  $D_1^w$  et  $D_1^m$  que nous avons mesurées, on trouve, pour la dose génétique par génération, une valeur de 100 mr, soit 3,3 mr en moyenne par an pour les cadrans des montres-bracelet, si l'on admet une durée de 30 ans pour l'intervalle entre deux générations. La dose correspondante pour les cadrans de réveils est d'environ 0,4 mr par an.

MM. E. HUGENROTHER et A. GOBBI ont mis au point et étalonné le discriminateur d'énergie utilisé, et Mlle M. MÜLLER a effectué la majeure partie des mesures d'activité.

Un article complémentaire sur ce sujet est paru dans «Experientia», Août 1960.

#### Bibliographie

- <sup>1)</sup> G. JOYER, Bull. Acad. S. Sc. Méd. 14, 367-387 (1958).
- <sup>2)</sup> Int. Com. on Rad. Protection, Recommendations, 1958, Pergamon Press.

### Inelastische Streuung von 14 MeV-Neutronen an schweren Kernen

VON P. HUBER, P. NIKLAUS UND R. WAGNER  
(Physikalische Anstalt der Universität Basel)

Beim Beschuss eines schweren Kernes mit 14 MeV-Neutronen beträgt die Anregungsenergie des Compound-Kerns etwa 22 MeV, das heisst man gelangt in ein Gebiet hoher Niveaudichte, was die Anwendung des statistischen Modells rechtfertigt. Die Energieverteilung der inelastisch gestreuten Neutronen wurde von WEISSKOPF<sup>1)</sup> berechnet:

$$N(E)dE = \text{const.} \cdot E \cdot e^{-E/T} dE \quad (1)$$

Man erhält eine Maxwell-Verteilung, mit einem Maximum bei  $E = T$ . Im Hinblick auf die thermodynamische Analogie nennt man den Parameter  $T$  die «Kern-Temperatur». Bei der hohen Anregungsenergie von etwa 22 MeV tritt die  $(n, 2n)$ -Reaktion in Konkurrenz zur inelastischen Streuung. Das vom Streukörper emittierte Neutronen-Spektrum wird eine Überlagerung zweier Maxwell-Verteilungen darstellen. Die spektrale Verteilung der primären Neutronen ergibt sich nach LANG und LE COU-TEUR<sup>2)</sup> zu:

$$N(E)dE = \text{const.} \cdot E^{5/11} e^{-\frac{12}{11} \frac{E}{T}} dE \quad (2)$$

Ein weiteres Ergebnis des sogenannten Verdampfungsmodells betrifft die Abhängigkeit der Kerntemperatur von der Anregungsenergie  $E^*$  und

von der Nucleonenzahl des Targetkerns. Unter vereinfachten Voraussetzungen erhält man die Relation:

$$T = \left( \frac{E^*}{a} \right)^{1/2} \tag{3}$$

wobei  $a$  eine Konstante bedeutet, die ungefähr proportional der Masse des Targetkerns ist.

Zweck der vorliegenden Arbeit ist, dieses Modell in einigen Punkten experimentell auf seine Gültigkeit zu überprüfen. Insbesondere bestehen Diskrepanzen bezüglich der Abhängigkeit der Kerntemperatur von der Nucleonenzahl des Streukörpers. Die Kerntemperatur sollte mit wachsendem Atomgewicht abnehmen. Die Temperaturen der magischen Kerne Blei und Wismuth liegen jedoch zu hoch. Zur Abklärung dieses Sachverhaltes stehen zwei Wege offen. Entweder man bestimmt die Temperatur

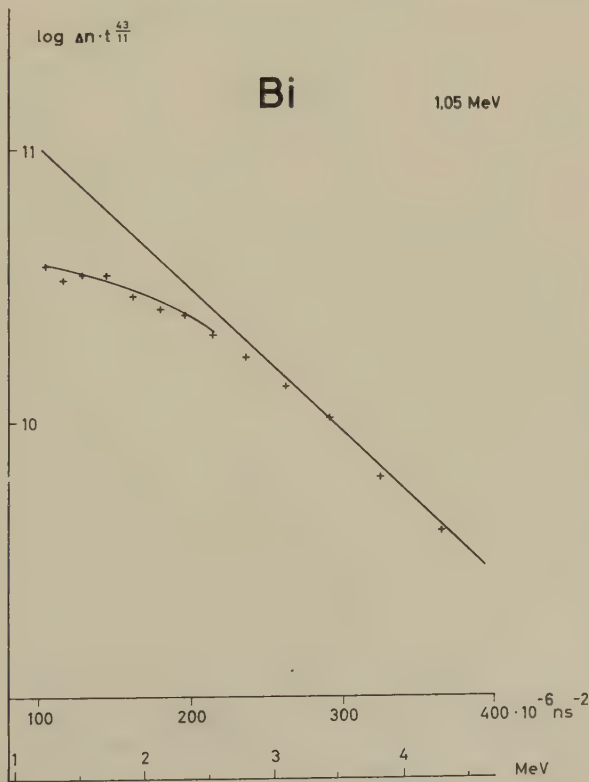


Fig. 1

Spektrale Verteilung der an  $^{209}\text{Bi}$  inelastisch gestreuten 14,7 MeV Neutronen. Die eingezeichnete Gerade entspricht einer Kerntemperatur von 1,05 MeV

eines dem Wismuth benachbarten nicht magischen Kerns (z. B. Hg) oder man versucht direkt, einen Einfluss der magischen Zahlen durch Bestrahlung von magischen und nicht magischen Isotopen eines bestimmten Elementes festzustellen.

Die Bestimmung der Neutronenspektren erfolgt mit Hilfe der Flugzeitmessung. Die Ansprechwahrscheinlichkeit des Neutronendetektors ist

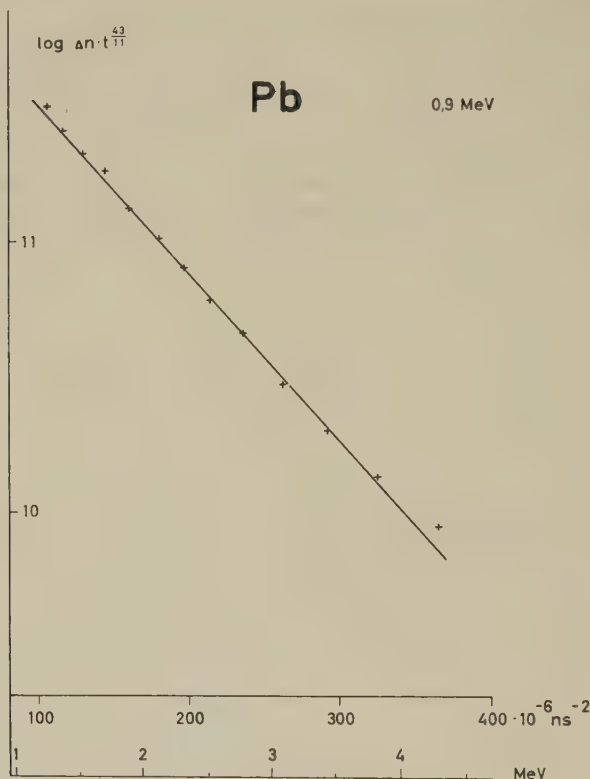


Fig. 2

Spektrale Verteilung der an Pb inelastisch gestreuten 14,7 MeV-Neutronen.  
Die Kerntemperatur ergibt sich zu 0,9 MeV

eine Funktion der Neutronenenergie. Die Neutronenspektren müssen deshalb auf konstante Empfindlichkeit korrigiert werden.

Zunächst wurde das Spektrum der an  $^{209}\text{Bi}$  inelastisch gestreuten Neutronen gemessen. Die Kerntemperatur dieses Kerns ist bekannt. Sie wurde von ROSEN und STEWART<sup>3)</sup> mit Hilfe von Kernphotoplatten zu 1,05 MeV bestimmt. Die dieser Temperatur entsprechende Gerade benutzen wir zur Ermittlung der Korrekturfaktoren. Zur graphischen Dar-

stellung der Flugzeitspektren ist zu bemerken, dass die in Formel (2) angegebene Energieverteilung auf die zeitliche Verteilung umgerechnet wurde, da bei einer Flugzeitmessung nicht die energetische, sondern die *zeitliche* Verteilung der gestreuten Neutronen registriert wird. Bei geeigneter logarithmischer Darstellung erwartet man eine Gerade, deren Neigung eine Funktion der Kerntemperatur ist. Figur 1 zeigt die spektrale Verteilung der an  $^{209}\text{Bi}$  gestreuten Neutronen.

Als zweiten Streukörper wählten wir eine natürliche Mischung von Blei. Die experimentelle Verteilung wurde mit den an  $^{209}\text{Bi}$  erhaltenen Korrekturfaktoren auf konstante Detektor-Empfindlichkeit umgerechnet. Wie Figur 2 zeigt, erfüllen diese Daten sehr gut die aus dem statistischen Modell folgende Aussage, auf einer Geraden zu liegen.

In einem dritten Experiment bestimmten wir die Kerntemperatur der nicht magischen Quecksilber-Isotope (Fig. 3). Man erkennt, dass die Tem-

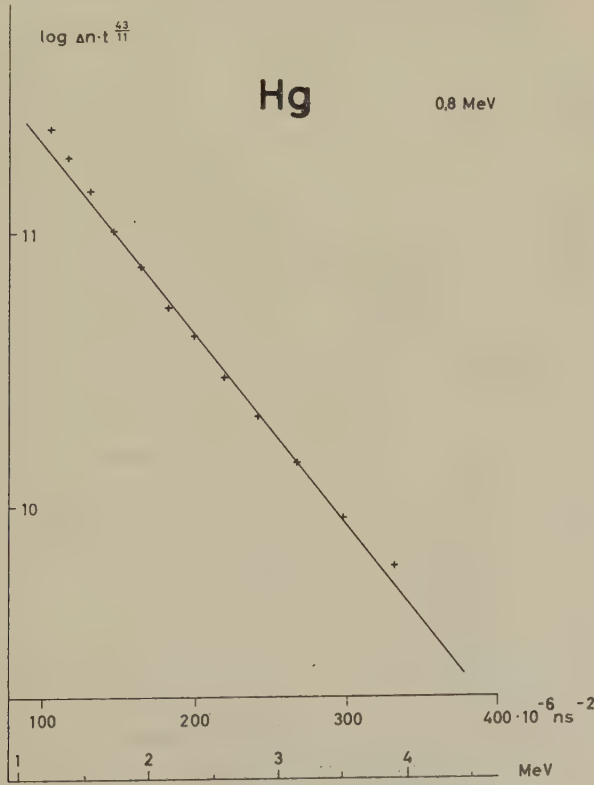


Fig. 3

Spektrale Verteilung der an Hg inelastisch gestreuten 14,7 MeV Neutronen.  
Die Temperatur ergibt sich zu 0,8 MeV



peraturen dieser drei Kerne sich gerade umgekehrt verhalten, als nach dem statistischen Modell zu erwarten wäre. Wir vermuten einen Einfluss der magischen Zahlen und glauben, mit einem Streuexperiment an  $^{206}\text{Pb}$  (Radio-Blei) weitere Informationen zu erhalten.

#### *Literatur*

- 1) WEISSKOPF, *Phys. Rev.* **52**, 295 (1937).
- 2) LANG und LE COUTEUR, *Proc. Phys. Soc.*, **67-A**, 586 (1954).
- 3) ROSEN und STEWART, *Phys. Rev.* **107**, 824 (1957).

### **Messungen an einer Duo-Plasmatron Ionenquelle**

VON P. HUBER, C. POPPELBAUM UND R. WAGNER  
(Physikalische Anstalt der Universität Basel)

Im Zusammenhang mit unseren time-of-flight Experimenten mit schnellen Neutronen entstand der Wunsch nach einer Hochstrom-Ionenquelle für Deuteronen. Einen sehr interessanten Typ einer Hochstrom-Ionenquelle stellt das sogenannte Duo-Plasmatron<sup>1)</sup> dar. Bei dieser Quelle wird eine Niedervolt-Gasentladung mit Hilfe einer Zwischenelektrode mit Durchtrittsöffnung eingeschnürt. Das höher verdichtete anodenseitige Plasma greift dabei durch die Durchtrittsöffnung hindurch in den kathodenseitigen Raum. Man konnte zeigen, dass das in Blasenform leuchtende Plasma durch eine elektrische Doppelschicht begrenzt ist. In dieser Doppelschicht werden Elektronen des dünneren kathodenseitigen Plasmas beschleunigt und geradezu auf den Raum vor der Emissionsöffnung fokussiert. Es entsteht daher in dem Raum vor der Ionenemissionsöffnung ein besonders dichtes Plasma. Dies ist schon beim sogenannten Uno-Plasmatron der Fall. Beim Duo-Plasmatron erhält man eine zusätzliche Entladungsverdichtung durch das inhomogene Feld einer magnetischen Polschuhlinse. Fig. 1 zeigt einen Schnitt durch das nach den Plänen von C. D. MOAK<sup>2)</sup>, Oak-Ridge in unserer Werkstatt gebaute Plasmatron, wobei einige konstruktive Änderungen gegenüber den erhaltenen Plänen angebracht wurden.

Die Grösse des Totalstroms sowie der Atomionenanteil sind eine Funktion des Bogenstroms in der Gasentladung. Mit einer Absaugspannung von 20–30 kV werden die Ionen aus der Emissionsöffnung (Durchmesser 0,1–0,3 mm) eines Wolframeinsatzes abgesaugt. Bei den ersten Messungen befand sich der Strahlauffänger direkt unterhalb der Absaugelektrode. Figur 2 zeigt die so erhaltenen Kurven des Totalstroms als Funktion des Bogenstroms für folgende Parameter:

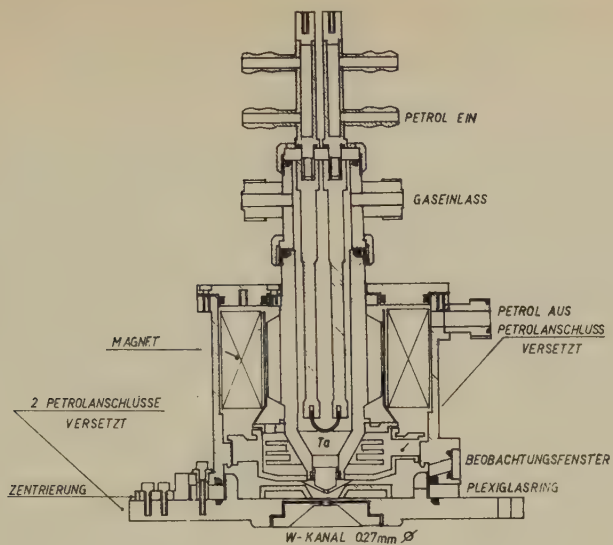


Fig. 1

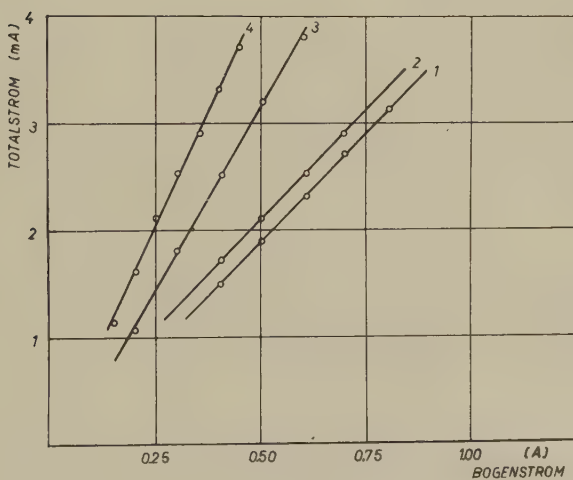


Fig. 2

- Kurve 1  $s = 1,2 \text{ mm}$ ,  $D = 2 \text{ mm}$ ,  $d = 0,3 \text{ mm}$   
 Kurve 2  $s = 0,4 \text{ mm}$ ,  $D = 2 \text{ mm}$ ,  $d = 0,3 \text{ mm}$   
 Kurve 3  $s = 0,4 \text{ mm}$ ,  $D = 1,5 \text{ mm}$ ,  $d = 0,2 \text{ mm}$   
 Kurve 4  $s = 0,4 \text{ mm}$ ,  $D = 1,5 \text{ mm}$ ,  $d = 0,3 \text{ mm}$

$s$  = Abstand Zwischenelektrode-Emissionsöffnung.

$D$  = Durchmesser der Zwischenelektrodenöffnung.

$d$  = Durchmesser der Emissionsöffnung.

In der Zwischenzeit wurde bemerkt, dass durch kleine  $s$  der Atomionenanteil stark verkleinert wird, so dass wir wieder mit mindestens 1,2 mm arbeiten.

Ein justierbares Linsensystem zur Fokussierung des Strahles auf ein Target und ein Magnet zur Analyse des Stromes wurden ebenfalls gebaut. Zur Festlegung des zur Deuteronenablenkung benötigten Magnetstroms wurde die  $(d, t)$ -Reaktion benutzt. Die Strahlanalyse ergab zum Beispiel bei 1.1 A-Entladungsstrom, einem Wolfram-Kanal von 0,1 mm Durchmesser und 26 kV Absaugspannung für  $D_2$ -Gas folgende Werte:

$$1/2 D_2^- \quad 320 \mu A$$

$$D^+ \quad 780 \mu A$$

$$D_2^- \quad 150 \mu A$$

$$D_3^- \quad 200 \mu A$$

schwerere Ionen ca. 100  $\mu A$

Die relative Grösse von  $D_2^+$  zu  $D_3^+$ -Anteil ist nur von dem Gasdruck in der Quelle abhängig: grösserer Druck ergibt grossen  $D_3^+$ -Anteil, kleinerer Druck grossen  $D_2^+$ -Anteil.

Bei grösseren Entladungsströmen wurden unter sonst etwa gleichen Bedingungen bis jetzt max. 1,6 mA  $D^+$  gemessen.

Bei Betrieb mit  $H_2$ -Gas beträgt der Atomionenanteil ebenfalls ca. 60%.

Neuerdings werden Ba-Sr-Oxydkathoden verwendet, die sich bei gleicher Emission durch wesentlich kleinere Leistungsaufnahme auszeichnen. Sie wurden uns freundlicherweise von der BBC zur Verfügung gestellt.

#### Literatur

- <sup>1)</sup> M. VON ARDENNE, Tabellen der Elektronenphysik, Ionenphysik und Übermikroskopie (Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin 1956).
- <sup>2)</sup> C. D. MOAK, Rev. Sci. Instr. 30, 694 (1959).

### Bestimmung von Elektronen-Wanderungsgeschwindigkeiten in A-N<sub>2</sub>, A-CO<sub>2</sub> und N<sub>2</sub>

VON A. COMUNETTI, P. HUBER und X. FINK  
Physikalisches Institut der Universität Basel

Erscheint demnächst

## Bestimmung des Reichweitespektrums schwach aktiver $\alpha$ -Präparate

VON P. HUBER UND F. WIDDER

(Physikalische Anstalt der Universität Basel)

Das Problem, das uns zum Bau der im folgenden beschriebenen Apparatur veranlasste, war die Frage nach dem Ursprung der  $\alpha$ -Strahlung von Rückständen eingedampfter, schwach radioaktiver Niederschläge und Industrieabwässer. Die zu untersuchenden Proben hatten spezifische  $\alpha$ -Aktivitäten von  $10^{-13}$ – $10^{-12}$  C/mg, die spezifischen  $\beta$ -Aktivitäten waren meist grösser, und zwar um den Faktor 10–100.

Durch die Bestimmung des Reichweitespektrums der von einer Schicht des aktiven Präparates emittierten  $\alpha$ -Teilchen kann man auf die Energien dieser Teilchen und damit auf die Art der  $\alpha$ -aktiven Elemente in der Schicht schliessen. Homogene Schichten herzustellen, die nur eine geringe Selbstabsorption aufweisen, ist bei den zu untersuchenden Materialien unmöglich. Man ist gezwungen, mit «dicken Schichten» zu arbeiten.

Der Aufbau der Apparatur ist in Figur 1 schematisch dargestellt. Die zu untersuchende Substanz befindet sich im Innern einer Hohlkugel. Die

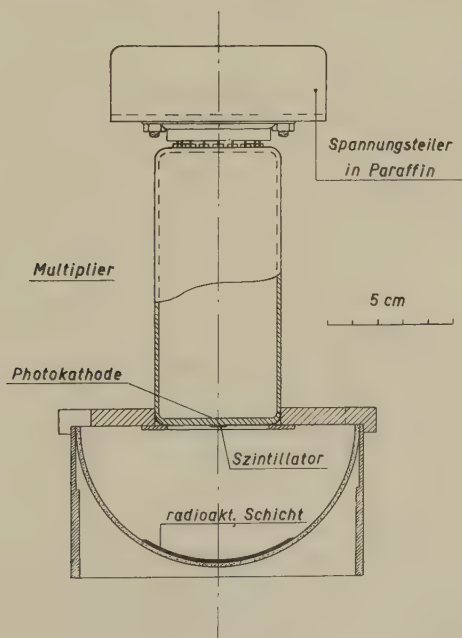


Fig. 1

Aufbau der Apparatur

Glas
  Plexiglas
  Stahl
  Kupfer

von der Schicht emittierten  $\alpha$ -Teilchen werden mit Hilfe einer dünnen ZnS-Schicht und eines Photomultipliers vom Typ EMI 9502 B gezählt. Der Multiplier ist so angeordnet, dass der Mittelpunkt der Szintillator-schicht mit dem Mittelpunkt der Hohlkugel zusammenfällt. Die ganze Konstruktion befindet sich innerhalb eines druckdichten Gehäuses. Der Druck des Füllgases kann von 0 bis 2 ata variiert werden.

Die Geometrie dieser Anordnung bietet wesentliche Vorteile:

1. Die dünne ZnS-Schicht bewirkt, dass  $\beta$ -Teilchen und  $\gamma$ -Quanten, die auf den Szintillator treffen, wesentlich schwächere Lichtblitze erzeugen als  $\alpha$ -Teilchen. Die Ausgangsimpulse des Multipliers lassen sich daher leicht so diskriminieren, dass weder  $\beta$ -Teilchen noch  $\gamma$ -Quanten vom Zähler registriert werden, während alle auftreffenden  $\alpha$ -Teilchen gezählt werden.

2. Durch den kleinen Durchmesser des Szintillators wird ein kleiner Nulleffekt erreicht, was für das Ausmessen schwach aktiver Präparate wichtig ist. Wir haben bei dieser Apparatur einen durchschnittlichen Nulleffekt von rund 2  $\alpha$ -Teilchen pro Stunde; das beste, was wir erreicht haben, war ein Nulleffekt von 0,5  $\alpha$ /h.

3. Es werden nur solche  $\alpha$ -Teilchen gezählt, die die Schicht in radialer Richtung verlassen. Man spart dadurch einen Kollimator. Das Auflösungsvermögen der Apparatur ist vom Radius des Szintillators und von der Ausdehnung der Substanzschicht in der Hohlkugel abhängig. Es lässt sich mit Hilfe der Geometrie der Anordnung berechnen.

4. Die Zahl der pro Zeiteinheit registrierten  $\alpha$ -Teilchen  $n$  in Abhängigkeit vom Druck  $p$  zeigt einen geradlinigen Verlauf, wenn nur  $\alpha$ -Strahler konstanter Energie in der Substanz enthalten sind:

$$n = n_0 (1 - p/p_0)$$

Der Schnittpunkt  $p_0$  der Geraden mit der  $p$ -Achse liefert ein Mass für die Energie der  $\alpha$ -Teilchen, der Schnittpunkt  $n_0$  mit der  $n$ -Achse ein Mass für die Gesamtaktivität der Substanz. Sind verschiedene  $\alpha$ -aktive Elemente in der Schicht enthalten, so wird

$$n = \sum_i n_{0i} (1 - p/p_{0i}).$$

Dies ist eine stückweise geradlinige Kurve. Durch Extrapolation der einzelnen geradlinigen Komponenten erhält man die Ordinatenabschnitte  $n_{0i}$ , die proportional den relativen Aktivitäten der verschiedenen  $\alpha$ -Strahler in der Schicht sind. Die Abszissenwerte  $p_{0i}$  der Schnittpunkte der einzelnen Komponenten ergeben durch einfache Umrechnung die Energien der verschiedenen  $\alpha$ -Teilchen.



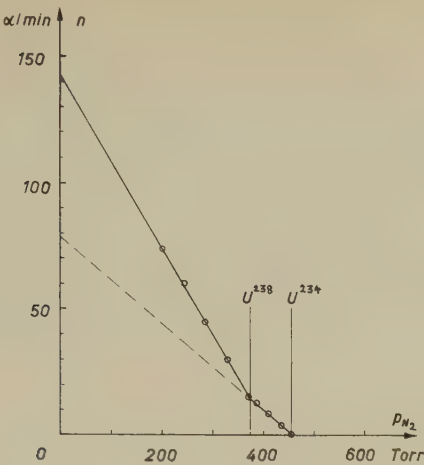


Fig. 2

Messergebnisse mit Uranoxyd-Eichpräparat.  
Ausgezogene Linien: theoretisch berechnete Kurve  $n(p)$ .

Kreise: Messpunkte

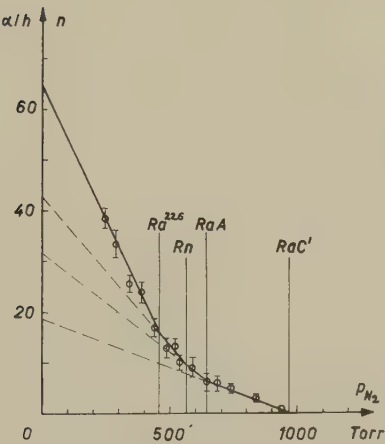


Fig. 3

Analyse eines schwach  $\alpha$ -aktiven Präparates.  
Ausgezogene Kurve: theoretisch berechneter Verlauf von  $n(p)$  für eine radium-  
haltige Substanz.

Kreise: Messpunkte und ihre statistische Schwankung

Einen geradlinigen Verlauf von  $n(p)$  erhält man dann, wenn

1. die Energie-Reichweite-Beziehung für  $\alpha$ -Teilchen in der Substanz bis auf einen konstanten Faktor dieselbe ist wie für  $\alpha$ -Teilchen im Füllgas und

2. nur solche  $\alpha$ -Teilchen gezählt werden, die die Schicht in radialer Richtung verlassen.

Figur 2 zeigt ein Beispiel für ein relativ stark  $\alpha$ -aktives Eichpräparat (Uranoxyd). Die Übereinstimmung der Messpunkte mit dem aus der Gesamtaktivität berechneten Kurvenverlauf ist sehr gut.

Figur 3 zeigt ein Beispiel für die Nutzenanwendung der Apparatur: die Analyse eines Abwasserpräparates einer Leuchtfarbenfabrik mit Radium als Verseuchung.

### Messung des differentiellen Neutronen-Streuquerschnittes an Sauerstoff-16 im MeV-Gebiet

von P. HUBER und W. HUNZINGER

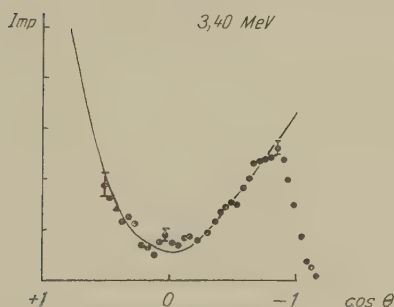
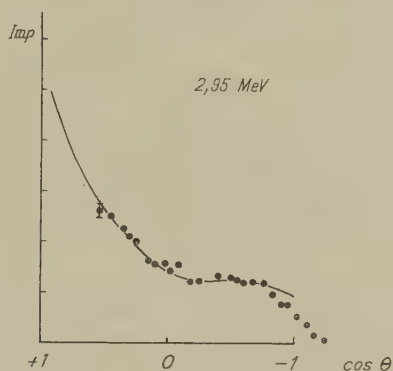
(Physikalische Anstalt der Universität Basel)

Vor drei Jahren hat die Madison-Gruppe neue, sorgfältige Messungen des totalen Neutronenquerschnittes am Sauerstoff-16 im MeV-Gebiet bekannt gegeben. Wir haben diese Publikation zum Anlass genommen, den differentiellen Streuquerschnitt an  $^{16}\text{O}$  neu zu messen. Ältere Messungen von BALDINGER, HUBER & PROCTOR aus dem Jahre 1952 lagen vor.

Unterhalb etwa 4 MeV ist die elastische Streuung der einzig auftretende Prozess von Neutronen an  $^{16}\text{O}$ . Der differentielle Querschnitt dieses Prozesses, d. h. der Querschnitt der Streuung in ein bestimmtes Raumwinkel-element als Funktion der Streurichtung, ist gleich der Winkelverteilung  $d\sigma/d\Omega$ . Integration der Winkelverteilung über alle Richtungen des Raumes ergibt den totalen Streuquerschnitt.

Die Winkelverteilung von Streuprozessen lässt sich an Gasen besonders leicht messen, indem das Energiespektrum der Rückstoskerne aufgenommen wird. Die Verteilung der Rückstossenergien ist bis auf einen konstanten Faktor gleich der Winkelverteilung der Streuung im Schwerpunktsystem, wobei die relative Rückstossenergie  $E/E_{\max}$  auf der Abszisse durch den Ausdruck  $(1 - \cos \theta)$  zu ersetzen ist.  $\theta$  bedeutet den Streuwinkel im Schwerpunktsystem. Bei einer Relativmessung des differentiellen Querschnittes, wie wir sie an  $^{16}\text{O}$  durchgeführt haben, ist die Kenntnis des Neutronenflusses am Ort der Messung nicht notwendig; ebenso geht die absolute Energie der Rückstoskerne nicht in die Rechnung ein.

Die Streuprozesse fanden in einer Ionisationskammer aus Aluminium, gefüllt mit 2 ata  $O_2$  statt. Um den Randeffekt auf vier Seiten des Messvolumens zu eliminieren, war der Ionisationskammer ein Kollimator aus Eisen vorgesetzt. Als Neutronenquelle diente die  $d-d$ -Reaktion. Deuteronen bis maximal 1 MeV wurden nach magnetischer Ausblendung auf ein Target aus schwerem Eis geschossen. Die Targetdicke betrug 60–80 keV.



Die durch die Rückstösse in der Kammer erzeugte Ionisation wurde mit einem Linearverstärker ballistisch gemessen. Das ballistische Defizit war weniger als 1%. Das Sättigungsdefizit, bei einer Feldstärke von 4 kV/cm, betrug 9%. Die Ausgangsimpulse des Linearverstärkers wurden in einem 50-Kanal-Impulsspektrometer analysiert, der mit zwei Batterien zu 50 Zählwerken ausgerüstet ist.

Neutronen aus anderer Quelle als dem Eistarget stören die Messung. wurden deshalb an allen gemessenen Spektren zwei Subtraktionen vorgenommen:

1. Das Störspektrum, entstanden aus anderer Quelle als dem  $D_2O$ -Target. Es wurde registriert nach Einfüllen von Wasser in die Kollimatoröffnung.

2. Das Störspektrum, entstanden durch das sich aufbauende Deuteriumtarget auf dem Targetträger. Es wurde registriert durch eine Messung ohne schwereres Eis.

Diese Korrekturen, insbesondere die erstere, können die zu messende Winkelverteilung beträchtlich ändern. Das Ausmass der Korrektur kann sogar grösser sein als das Nettospektrum selbst, namentlich bei den Messungen mit kleinen Neutronenenergien, die nicht in Vorwärtsrichtung, sondern unter Winkeln zwischen  $60^\circ$  und  $135^\circ$  zum Deuteronenstrahl durchgeführt wurden.

Über das Energieintervall von 2,0 bis 4,1 MeV verteilt sind auf diese Weise 16 Winkelverteilungen aufgenommen worden. Figur 1 zeigt als Beispiel Messungen bei 2,95 und 3,40 MeV. An Stelle der relativen Rückstossenergie, resp. der Kanalnummer ist  $\cos \theta$  von  $+1$  bis  $-1$  aufgetragen. Als Messpunkte mit ihrem statistischen Fehler sind die pro Kanal registrierte und korrigierte Impulszahl in willkürlichem Maßstab eingezeichnet.

Stellt man den differentiellen Querschnitt als Summe von Legendre-Polynomen dar, so lässt sich aus dem letzten von Null verschiedenen Koeffizienten der höchste an der Streuung beteiligte Bahndrehimpuls angeben. Entwicklung der gemessenen Winkelverteilungen nach Legendrepolynomen ergab als den höchsten vorkommenden Bahndrehimpuls  $l = 2$ .

### **Messungen der chemischen Verschiebung von $^{17}\text{O}$ -Kernresonanzlinien**

von H. A. CHRIST

(Physikalische Anstalt der Universität Basel)

Von den 3 stabilen Sauerstoff-Isotopen besitzt nur  $^{17}\text{O}$  ein magnetisches Moment. Da dieses Isotop eine natürliche Häufigkeit von 0,037% hat sind die Kernresonanzlinien ohne künstliche Anreicherung äusserst schwach und können nur mit besonders rauscharmen Spektrometern beobachtet werden.

Unsere Messungen wurden an einem hochauflösenden Varian-Spektrometer, vervollständigt durch einen Lock-in-Detector eigener Konstruktion, durchgeführt. Beim Magnetfeld von 13 kGauss beträgt die Larmorfrequenz von  $^{17}\text{O}$  7,65 MHz. Der Lock-in-Detector arbeitet mit einer Modulationsfrequenz von 40 Hz und einer Bandbreite von  $1\frac{-1}{100}$  Hz.

Von der physikalisch-chemischen Anstalt der Universität Basel wurde uns etwa 7 g Wasser mit einem  $^{17}\text{O}$ -Gehalt von ungefähr 1% zur Verfügung

gung gestellt. Diese Probe dient zur Eichung. Im übrigen verwendeten wir bisher ausschliesslich Substanzen mit natürlichem <sup>17</sup>O-Gehalt. Wir bestimmten vor allem die chemische Verschiebung und die Linienbreite von organischen Flüssigkeiten, die nur C, H und O enthalten.

Tabelle 1

Verbindung	Shift ppm	Linien- breite Hz	Verbindung	Shift ppm	Linien- breite Hz
Methanol . . . . .	+ 37	100	Aceton . . . . .	− 568	130
Äthanol. . . . .	− 5	200	Methyläthylketon . . . . .	− 563	110
<i>n</i> -Propanol . . . . .	− 1	260	Cyclopentanon . . . . .	− 548	130
<i>iso</i> -Propanol . . . . .	− 37	260	Cyclohexanon . . . . .	− 559	130
Glykol . . . . .	+ 6	350	Mesityloxyd . . . . .	− 555	180
Diäthyläther . . . . .	− 15	140	Diacetyl . . . . .	− 571	130
Glykoldimethyläther . . . . .	+ 25	140	Acetaldehyd . . . . .	− 595	50
Dioxan . . . . .	+ 3	130	Propionaldehyd . . . . .	− 581	65
Tetrahydrofuran . . . . .	− 19	80	<i>n</i> -Butylaldehyd . . . . .	− 589	110
Ameisensäure . . . . .	− 254	80	Acrolein . . . . .	− 583	50
Essigsäure . . . . .	− 254	170			
Propionsäure . . . . .	− 250	240			

Tabelle 2

Verbindung	Shift ppm		Linienbreite Hz
	−0−	0 =	
Ameisensäure-methylester . . . . .	142	358	110
Essigsäure-methylester . . . . .	137	355	110
Propionsäure-methylester . . . . .	133	350	110
Malonsäure-dimethylester . . . . .	143	363	350
Bernsteinsäure-dimethylester . . . . .	151	368	450
Ameisensäure-äthylester . . . . .	169	359	140
Essigsäure-äthylester . . . . .	166	256	70
Propionsäure-äthylester . . . . .	164	350	150
Oxalsäure-diäthylester . . . . .	162	355	400
Malonsäure-diäthylester . . . . .	166	356	250
Bernsteinsäure-diäthylester . . . . .	178	363	500
Ameisensäure- <i>n</i> -propylester . . . . .	163	354	140
Kohlensäure-diäthylester . . . . .	120	240	160
Glykol-diacetat . . . . .	148	351	400
Chlorameisensäure-äthylester . . . . .	170	348	130
Essigsäure-anhydrid . . . . .	259	393	170
Propionsäure-anhydrid . . . . .	248	390	210



Die Genauigkeit der Shiftmessungen hängt hauptsächlich von der Linienbreite ab. Bei schmalen Linien, mit einer Breite von 50 Hz oder 6,5 ppm, schätzen wir den Fehler zu 1–2 ppm, bei den breitesten Linien zu 10–20 ppm. Dies ist gegenüber den bisher veröffentlichten Messungen ein wesentlicher Gewinn an Genauigkeit. Die Angaben von *WEAVER et al.*<sup>1)</sup> und *DHARMATTI et al.*<sup>2)</sup> weichen von unsern Ergebnissen bis 50 ppm ab. Bei Estern wurde nur eine Linie beobachtet<sup>2)</sup>.

Die Linienbreite wird durch Modulationseffekte und Sättigung in teilweise unübersichtlicher Weise beeinflusst, so dass hier der Fehler bis zu 50% betragen dürfte.

In der Übersichtstabelle 4 sind die chemischen Verschiebungen der Alkohole, Äther, Säuren, Ketone, Aldehyde, Ester und Säureanhydride in Gruppen zusammengefasst. Die genauen Zahlen dazu stehen in Tabelle 1

Tabelle 3

Verbindung	Shift ppm	Linienbreite Hz
0-Ameisensäure-methylester . . . . .	– 28	160
0-Ameisensäure-äthylester . . . . .	– 45	300
Dimethylformal . . . . .	– 8	50
Diäthylformal . . . . .	– 43	85
Acetal . . . . .	– 52	160
Paraldehyd . . . . .	– 102	450
Brenztraubensäure-äthylester . . . . .	– 153	250
	– 333	250
	– 570	250
Acetessigsäure-äthylester . . . . .	– 164	300
	– 353	300
	– 565	300
Acetylaceton (Enolform) . . . . .	– 269	130
Furan . . . . .	– 243	85
Furfural . . . . .	– 237	140
	– 530	140
Äthylenchlorhydrin . . . . .	+ 4	400
Epichlorhydrin . . . . .	+ 12	110
Dimethylsulfoxyd . . . . .	– 13	120
Nitrobenzol . . . . .	– 561	250
Tetramethoxysilan . . . . .	+ 30	110
Formamid . . . . .	– 306	85
Harnstoff (wässrige Lösung) . . . . .	– 205	140
H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> conc. (98%) . . . . .	– 138	650
HNO <sub>3</sub> conc. (69%) . . . . .	– 409	230
HClO <sub>4</sub> (60%) . . . . .	– 288	210
D <sub>2</sub> O (96%) . . . . .	+ 3	60

für Verbindungen mit nur einer Linie und in Tabelle 2 für Verbindungen mit 2 Linien. Die Tabelle 3 enthält Verbindungen, die sich nicht in die Übersichtstabelle einordnen lassen oder die mehr als 2 Linien geben. Die

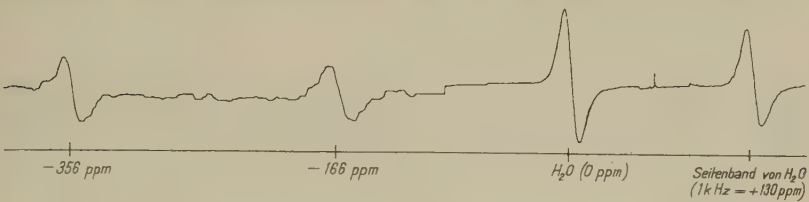


Fig. 1

Spektrum von Essigsäure-Äthylester mit Eichsignalen.  
Ungefähr bei -100 ppm wurde die Ester-Probe durch die Wasser-Eichprobe ersetzt. Das Seitenband H<sub>2</sub>O wurde durch Amplitudenmodulation der Hochfrequenz erzeugt.

Tabelle 4

Übersicht über die chemischen Verschiebungen der <sup>17</sup>O-Kernresonanz-Linien von organischen Flüssigkeiten. Bezugspunkt: H<sub>2</sub>O = 0; + = stärkeres Magnetfeld

ppm				
+100				
0	]	+ 40--40	Alkohole und Äther	- 0 -
-100				
	]	130-150	Methylester	- 0 -
		160-180	Äthyl- und Propylester	- 0 -
-200				
	]	240-260	Säuren und Säureanhydride	- 0 -
-300				
	]	350-370	Ester	0 =
-400		390-393	Säureanhydride	0 =
-500				
	]	550-570	Ketone	0 =
-600		580-600	Aldehyde	0 =

chemischen Verschiebungen sind auf Wasser bezogen, wobei + stärkeres Magnetfeld bedeutet. In Tabelle 2 liegen alle Verschiebungen bei schwächerem Feld. Fig. 1 zeigt ein  $^{17}\text{O}$ -Spektrum von Essigsäure-Äthylester und Eichsignale von Wasser.

#### Literatur

- 1) WEAVER, TOLBERT, and LA FORCE, JCP 23, 1956 (1955).
- 2) DHARMATTI, SUNDARA RAO und VIJAYARAGHAVAN, Nuovo Cimento 11, 656 (1959).

### $n'$ - $\gamma$ -Korrelation der unelastischen Neutronenstreuung I Experimente an $^{24}\text{Mg}$

VON H. R. BRUGGER, T. NIEWODNICZANSKI\*) und M. P. STEIGER  
(Laboratorium für Kernphysik ETH, Zürich)

#### 1. Einleitung

Die Frage des Mechanismus bei Kernreaktionen hat in den letzten Jahren stark an Bedeutung gewonnen. Es ist erkannt worden dass die Zwischenkernhypothese in Verbindung mit der «statistischen Annahme» viele experimentelle Tatsachen nicht oder nur teilweise zu erklären vermag. Dies ist auch bei der unelastischen Streuung von Neutronen der Fall<sup>1)</sup>. Im allgemeinen werden die Abweichungen durch eine Direktanregung beschrieben, bei welcher angenommen wird, dass das einfallende Teilchen ohne Bildung eines Zwischenkerns direkt mit einem oder mehreren Targetnukleonen in Wechselwirkung tritt<sup>3)4)5)</sup>. Nun ist von theoretischer Seite darauf hingewiesen worden<sup>2)</sup>, dass die Neutron-Gamma-Korrelation der unelastischen Streuung  $X(n, n' \gamma)$  bei Direktanregung wesentlich anders verläuft als bei Zwischenkernanregung. Experimente darüber sind aber erst in einer einzigen kurzen Zusammenfassung beschrieben worden: THEUS *et al.*<sup>7)</sup> haben mit 14-MeV-Neutronen die Azimutalabhängigkeit der Korrelationsfunktion bei festgehaltenem Neutron- und Gamma-Emissionswinkel gemessen.

Die vorliegenden Experimente verfolgen den Zweck, durch Untersuchung der Reaktion  $^{24}\text{Mg}(n, n' \gamma)$ ,  $Q = -1,368$  MeV, mit 3,45-MeV-Neutronen einen vorläufigen Beitrag zu diesem Problemkreis bei kleinerer Energie zu bieten und Erfahrungen für weitere Messungen zu sammeln.

#### 2. Experimentelle Anordnung

Gesucht ist die Korrelationsfunktion  $W(\theta_{n'}, \theta_{\gamma}) d\Omega_{n'} d\Omega_{\gamma}$ , das heisst die relative Wahrscheinlichkeit, dass das unelastisch gestreute Neutron

\*) Beurlaubt vom Institut für Kernforschung, Warschau.

unter dem Winkel  $\theta_n$  in den Raumwinkel  $d\Omega_n$  gelangt, wenn gleichzeitig das Gammaquant unter dem Winkel  $\theta_\gamma$  in den Raumwinkel  $d\Omega_\gamma$  emittiert wird.  $\theta_n$  und  $\theta_\gamma$  sind bezüglich der Richtung des einfallenden Neutrons gerechnet. Hier und im folgenden sind alle Grössen im Schwerpunktsystem angegeben.

Die Neutron-Gamma-Korrelation wird aus Intensitätsgründen in Ringgeometrie gemessen, wie aus Fig. 1 ersichtlich ist. Die Neutronen ( $E_n = 3,45 \pm 0,05$  MeV) werden mit der *D-D*-Reaktion in einem Schwereis-target produziert und die gestreuten Neutronen in einem plastischen Szintarget

#### EXPERIMENTELLE ANORDNUNG

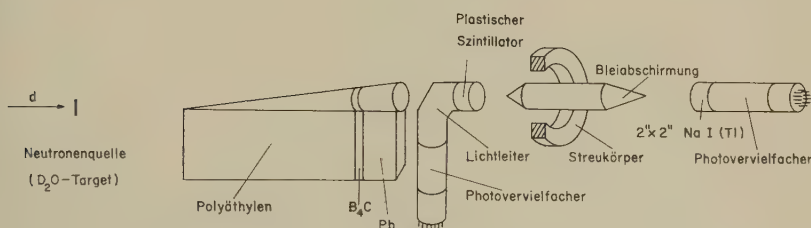


Fig. 1

Experimentelle Anordnung zur Messung der Neutron-Gamma-Korrelation

tillator «Pilot B» von 50 mm Durchmesser und 20 mm Dicke registriert. Der Streukörper besteht aus natürlichem Magnesium von 99,6% Reinheit und weist einen mittleren Durchmesser von 125 mm und einen Querschnitt von  $25 \times 25$  mm<sup>2</sup> auf. Die «halboffene» Geometrie erwies sich nach längeren Versuchen als die günstigste. Der Schattenkegel besteht aus 27 cm Polyäthylen, 400 mg/cm<sup>2</sup> Borkarbid und 5 cm Blei. Der Na I-Kristall hat 5 cm Durchmesser und 5 cm Höhe.

Figur 2 zeigt das Blockschema der Elektronik. Es handelt sich um eine übliche Fast-Slow-Koinzidenzapparatur mit einer Auflösungszeit von  $2\tau = 10$  ns. Der Tripelkoinzidenzimpuls öffnet ein Tor im 200-Kanal-Impulsspektrographen, der das Gammaspektrum registriert. Als Testexperiment wurde die Koinzidenzstosszahl in Funktion der Verzögerung für eine <sup>60</sup>Co-Quelle aufgenommen (vgl. Fig. 3). Die Auflösungszeit ist so gewählt, dass die Neutronen, die wegen der endlichen Geometrie Laufzeitdifferenzen bis  $\pm 1,8$  ns haben können, trotzdem mit gleicher Ansprechwahrscheinlichkeit registriert werden. – Die integrale Linearität des Gamma-Linearkanals wurde mit radioaktiven Quellen geprüft und erwies sich besser als 0,3%.

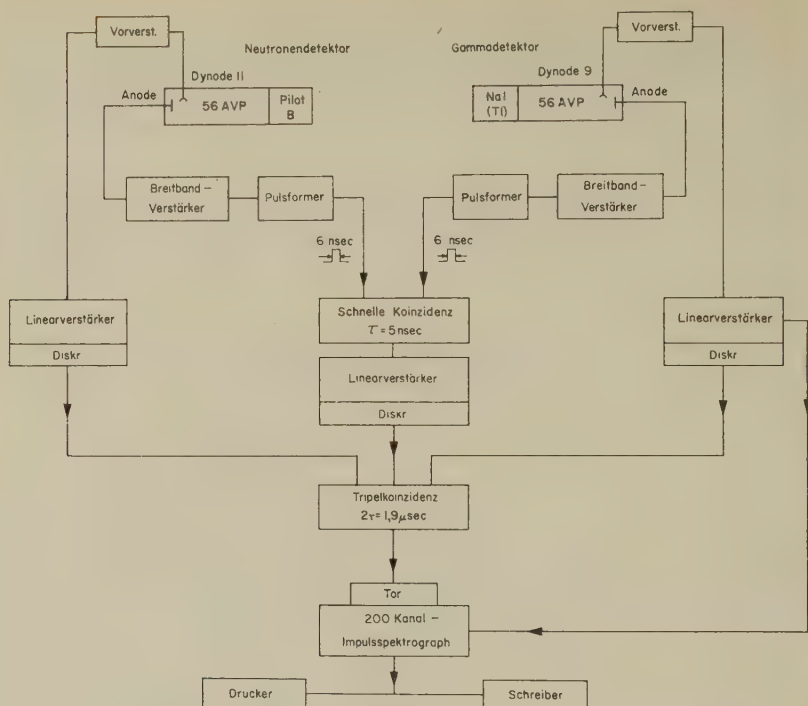


Fig. 2

Blockschema der Elektronik

### 3. Auswertung

Als Mass für die Korrelationsfunktion  $W$  dient die Fläche der 1,37-MeV-Photospitze im Impulsspektrum. Figur 4 zeigt ein typisches Spektrum bei Messung mit und ohne Streukörper für ein «dickes» Schwereistarget.

Eine Veränderung der Winkel  $\theta_n$  und  $\theta_\gamma$  bedeutet bei Ringgeometrie gleichzeitig eine Veränderung des Raumwinkels, unter dem ein Punkt des Streukörpers die Detektoren sieht. Der wirksame Raumwinkel wurde experimentell bestimmt mittels radioaktiver Ringquellen von der Grösse des Mg-Streuings.

Eine Korrektur der Korrelationsfunktion für endliche Grösse von Streukörper und Detektoren wurde wegen der beschränkten Anzahl von Messpunkten nicht vorgenommen. Die Winkelunschärfe beträgt  $4^\circ \leq |\Delta\theta_\gamma| \leq 13^\circ$  bzw.  $10^\circ \leq |\Delta\theta_n| \leq 13^\circ$ . Ebenso wurde vorläufig eine Korrektur für Mehrfachstreuung der Neutronen und für Comptonstreuung der Gammaquanten weggelassen. Eine Abschätzung zeigt, dass das Verhältnis von



einfach zu mehrfach gestreuten Primärneutronen rund 9:1 beträgt. Weniger als 15% der unelastisch gestreuten Neutronen erleiden im Ring eine zweite Streuung, vorzugsweise in Vorwärtsrichtung<sup>9)</sup> und weniger als 11% der 1,37-MeV-Gammaquanten erfahren Comptoneffekt im Magne-

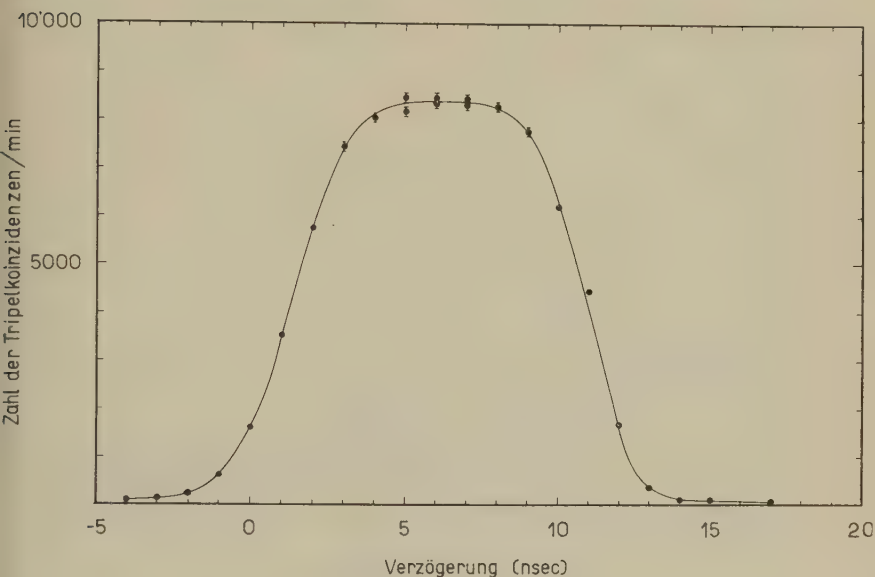


Fig. 3

Tripelkoinzidenzstosszahl in Abhängigkeit von der Verzögerung für eine  $\text{Co}^{60}$ -Quelle

sium, ebenfalls hauptsächlich in Vorwärtsrichtung. Photoeffekt und Paarbildung sind vernachlässigbar.

Die Lebensdauer des 1,37-MeV-Niveaus ist am  $^{24}\text{Na}$ -Zerfall zu  $\tau = (1,1 \pm 0,4) \cdot 10^{-12} \text{ s}^6$ ) und aus der unelastischen Streuung von 187-MeV-Elektronen zu  $1,9 \cdot 10^{-12} \text{ s}^8$ ) ermittelt worden. Das ist so kurz, dass keine Störung der Neutron-Gamma-Korrelation durch extranukleare Felder zu erwarten ist.

Bei unserm Auswerteverfahren ist wichtig, dass sich in der Umgebung von 1,37 MeV keine fremden Gammalinien vorfinden. Bei der Untergrundmessung (Fig. 4) konnte keine solche festgestellt werden. Hingegen fanden Gove *et al.*<sup>12)</sup> eine 1,38-MeV-Linie beim Übergang  $(4) \rightarrow (1)$  in  $^{25}\text{Mg}(p, p' \gamma)$ . Auf Grund des beobachteten  $(4) \rightarrow (0)$ -Überganges und der Daten von Gove schätzen wir die Intensität der Störlinie zu  $(3 \pm 7)\%$  der Intensität des  $(1) \rightarrow (0)$ -Überganges in  $^{24}\text{Mg}$ . Dafür wurde keine Korrektur angebracht.

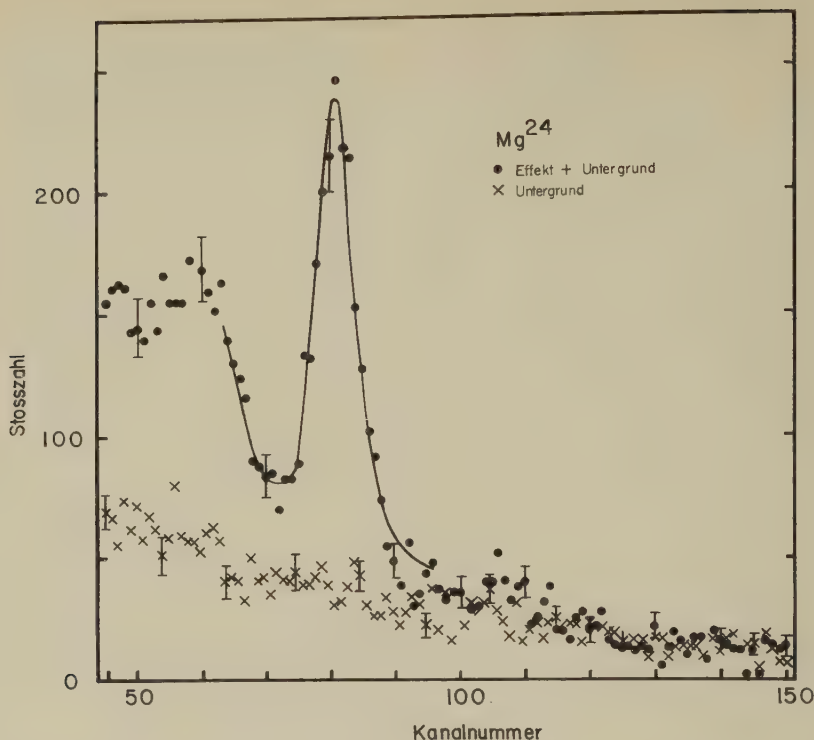


Fig. 4

Impulshöhenspektren in der Umgebung der 1,37 MeV-Linie von  $^{24}\text{Mg}$  mit und ohne Streukörper

#### 4. Ergebnisse

Die Figuren 5 bis 7 zeigen die bisherigen Messresultate für drei Gamma-emissionswinkel, zusammen mit theoretischen Kurven, die in der folgenden Arbeit näher besprochen sind. Die Messpunkte sind auf die theoretischen Korrelationsfunktionen für Zwischenkernbildung normiert worden. Die Fehlerschranken enthalten die statistischen Schwankungen, die Unsicherheit im Trennen von Photospitze und Untergrund, sowie den geschätzten Fehler bei der Bestimmung des Raumwinkels.

#### 5. Diskussion

Die Figuren zeigen, dass die Messungen im wesentlichen mit der Theorie von SATCHLER<sup>10)</sup> (in den Figuren mit «Zwischenbildung 1 und 2» eingetragen) übereinstimmen. Abweichungen, wie sie bei  $\theta_\gamma = 15^\circ$  auftreten, wären zu erwarten, wenn die statistische Annahme nicht erfüllt

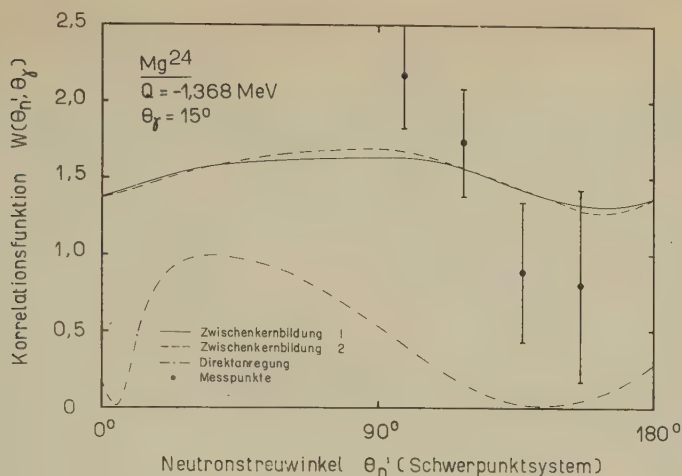


Fig. 5

Neutron-Gamma-Korrelationsfunktion für  $\theta_\gamma = 15^\circ$ 

Ausgezogene Kurve: Berechnung nach SATCHLER<sup>10)</sup> für statistisches Modell mit abgerundetem optischen Potential bei Oberflächenabsorption.

Gestrichelte Kurve: Dasselbe bei Volumabsorption.

Strichpunktierte Kurve: Berechnung nach SATCHLER für Direktanregung<sup>2)</sup>.

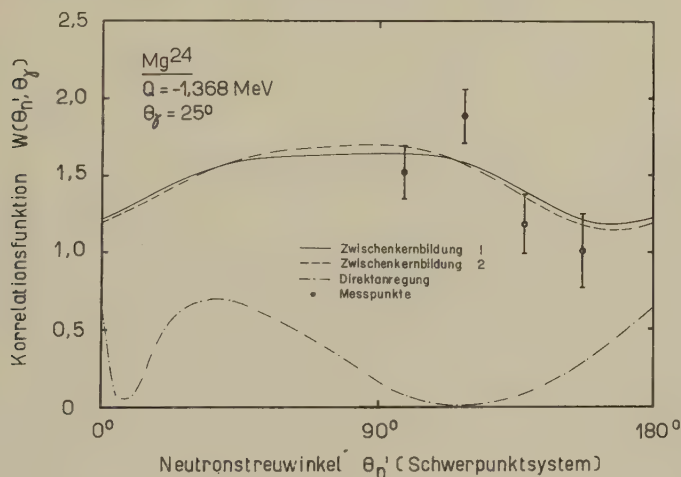


Fig. 6

Neutron-Gamma-Korrelationsfunktion für  $\theta_\gamma = 25^\circ$ 

Ausgezogene Kurve: Berechnung nach SATCHLER<sup>10)</sup> für statistisches Modell mit abgerundetem optischen Potential bei Oberflächenabsorption.

Gestrichelte Kurve: Dasselbe bei Volumabsorption.

Strichpunktierte Kurve: Berechnung nach SATCHLER für Direktanregung<sup>2)</sup>.

ist, oder wenn die unelastische Streuung auch bei dieser relativ kleinen Energie zum Teil unter Direktanregung verläuft. Dieser Punkt wird demnächst genauer untersucht werden. Ähnliche Ergebnisse lieferten Messungen der differentiellen Wirkungsquerschnitte. THOMSON, CRANBERG und LEVIN<sup>9)</sup> bestimmten die Winkelverteilung der an Mg unelastisc

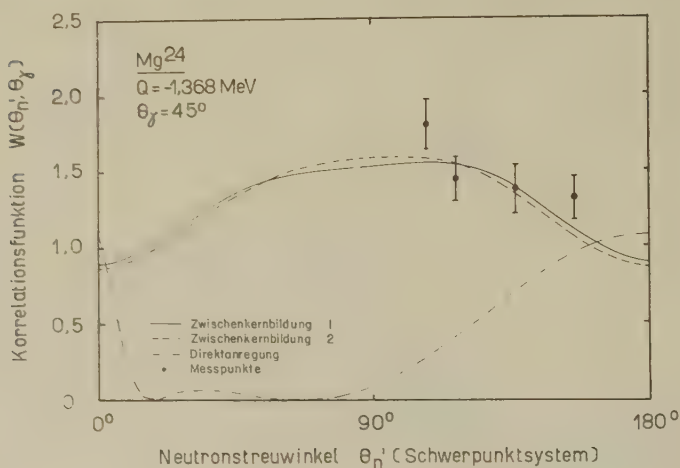


Fig. 7

Neutron-Gamma-Korrelationsfunktion für  $\Theta_\gamma = 45^\circ$

- Ausgezogene Kurve: Berechnung nach SATCHLER<sup>10)</sup> für statistisches Modell mit abgerundetem optischen Potential bei Oberflächenabsorption.
- Gestrichelte Kurve: Dasselbe bei Volumabsorption.
- Strichpunktierte Kurve: Berechnung nach SATCHLER für Direktanregung<sup>2)</sup>.

gestreuten Neutronen für Primärenergien zwischen 2 und 5 MeV und fanden nur geringe Abweichungen von der vom statistischen Modell geforderten Symmetrie bezüglich  $90^\circ$ . HOSOE und SUZUKI<sup>11)</sup> ermittelten die Winkelverteilung der 1,37-MeV-Gammaquanten von <sup>24</sup>Mg für 2,95 MeV-Neutronen. Ihre Resultate sind in guter Übereinstimmung mit der Theorie von SATCHLER<sup>10)</sup>, sofern ein abgerundetes optisches Potential verwendet wird.

Die Messungen werden fortgewetzt.

Wir möchten Herrn Prof. Dr. P. SCHERRER für die grosszügige Förderung des Experiments auch an dieser Stelle unsern aufrichtigen Dank aussprechen, und ebenso Herrn Prof. Dr. P. MARMIER für sein wohlwollendes Interesse und die tatkräftige Unterstützung.

*Literatur*

- <sup>1)</sup> L. ROSEN und L. STEWART, Phys. Rev. *99*, 1052 (1955).
- <sup>2)</sup> G. R. SATCHLER, Proc. Phys. Soc. *A* *68*, 1037 (1955).
- <sup>3)</sup> N. AUSTERN, S. T. BUTLER und H. McMANUS, Phys. Rev. *92*, 350 (1953). – S. T. BUTLER, Phys. Rev. *106*, 272 (1957). – C. A. LEVINSON und M. K. BANERJEE, Ann. Phys. (N. Y.) *2*, 471 (1957); *2*, 499 (1957); *3*, 67 (1958).
- <sup>4)</sup> D. M. BRINK, Proc. Phys. Soc. *A* *68*, 994 (1955). – S. HAYAKAWA und S. YOSHIDA, Progr. Theor. Phys. *14*, 1 (1955). – D. M. BRINK und S. YOSHIDA, Suppl. Nuovo Cim. *4*, 1121 (1956). – D. M. CHASE, L. WILETS und A. R. EDMONDS, Phys. Rev. *110*, 1080 (1958).
- <sup>5)</sup> J. S. BLAIR und E. M. HENLEY, Phys. Rev. *112*, 2029 (1958). – J. S. BLAIR, Phys. Rev. *115*, 928 (1959).
- <sup>6)</sup> S. OFER, A. SCHWARZSCHILD, Phys. Rev. Lett. *3*, 384 (1959).
- <sup>7)</sup> R. B. THEUS, A. H. AITKEN und L. A. BEACH, Bull. Am. Phys. Soc. *5*, 45 (1960).
- <sup>8)</sup> R. H. HELM, Phys. Rev. *104*, 1466 (1956).
- <sup>9)</sup> D. B. THOMSON, L. CRANBERG und J. S. LEVIN, BAPS *3*, 365 (1958) und private Mitteilung.
- <sup>10)</sup> G. R. SATCHLER, Phys. Rev. *94*, 1304 (1954).
- <sup>11)</sup> M. HOSOE und S. SUZUKI, J. Phys. Soc. Japan *14*, 699 (1959).
- <sup>12)</sup> H. E. GOVE, G. A. BARTHOLOMEW, E. B. PAUL und A. E. LITHERLAND, Nuclear Phys. *2*, 132 (1956).

## ***n'*- $\gamma$ -Korrelation der unelastischen Neutronenstreuung II Berechnungen**

VON S. PRÊTRE, H. R. BRUGGER und M. P. STEIGER  
(Laboratorium für Kernphysik ETH, Zürich)

### *1. Einleitung*

Im Zusammenhang mit Messungen der Neutron-Gamma-Korrelation (vgl. die vorangehende Arbeit) sind numerische Berechnungen der Korrelationsfunktion für  $^{56}\text{Fe}$  und  $^{24}\text{Mg}$  für Neutronenergien von einigen MeV vorgenommen worden, wobei das Schwergewicht auf dem statistischen Modell lag. Insbesondere wurde abgeklärt, inwiefern die Winkelkorrelation von den Parametern des optischen Modells abhängt.

### *2. Korrelationsfunktion nach dem statistischen Modell*

$W(\theta_{n'}, \theta_\gamma) d\Omega_{n'} d\Omega_\gamma$  sei die Wahrscheinlichkeit, dass das unelastisch gestreute Neutron unter dem Winkel  $\theta_{n'}$  in den Raumwinkel  $d\Omega_{n'}$  gelangt, wenn gleichzeitig das Gammaquant unter dem Winkel  $\theta_\gamma$  in den Raumwinkel  $d\Omega_\gamma$  emittiert wird.  $\theta_{n'}$  und  $\theta_\gamma$  sind bezüglich der Einfallsrichtung des Neutrons gemessen und liegen in derselben Ebene, so dass gilt: Azimut  $\varphi = 0$ . Alle Grössen sind im Schwerpunktsystem angegeben. Den Berechnungen liegt eine Arbeit von SATCHLER<sup>1)</sup> zugrunde, die im wesentlichen folgende Annahmen enthält:



- Das einfallende Neutron der Energie  $E_n$  bildet mit dem Targetkern einen Zwischenkern.
- Statistische Annahme: Die Interferenzterme für Zwischenkernzustände mit verschiedenem Spin und Parität verschwinden, wenn man das statistische Mittel über diese Zustände bildet. Die auslaufenden Neutronwellen sind somit inkohärent.
- Spin und Parität des Targetkerns sind im Grundzustand  $0^+$  und im ersten angeregten Zustand  $2^+$ .
- Alle Neutronwellen mit Bahndrehimpuls  $l \geq 3$  sind vernachlässigbar.
- Der Zerfall des Zwischenkerns erfolgt direkt in den ersten angeregten Zustand des Targetkerns (keine  $\gamma$ -Kaskade).
- Die auftretenden Transmissionskoeffizienten werden dem optischen Modell entnommen, wobei folgende Potentialformen Verwendung finden:

a) Kastenpotential<sup>4)</sup>:

$$\begin{aligned} V(r) &= -V_0 (1 + i\zeta) & \text{für } r < R = r_0 A^{1/3} \\ V(r) &= 0 & \text{für } r > R \\ V_0 &= 42 \text{ MeV}; \zeta = 0,04 \text{ bzw. } 0,20; r_0 = 1,45 f \end{aligned}$$

b) Abgerundetes Potential mit Volumabsorption:

$$V(r) = \frac{-V_0 (1 + i\zeta)}{1 + \exp \frac{r - R}{a}} \quad R = r_0 A^{1/3}$$

Transmissionskoeffizienten durch Interpolation aus den Daten von BEYSTER *et al.*<sup>5)</sup>:  $V_0 = 40 \dots 41 \text{ MeV}$ ;  $\zeta = 0,15$ ;  $r_0 = 1,45 f$ ;  $a = 0,35 f$ .

c) Abgerundetes Potential mit Oberflächenabsorption:

$$\begin{aligned} V(r) &= -V_0 & \text{für } r < R = (r_0 A^{1/3} + 0,5) f \\ V(r) &= -V_0 \left( 1 - i\lambda \frac{d}{dx} \right) \left( \frac{1}{e^x - x} \right) & \text{für } r > R \\ \text{wobei } x &= \frac{r - R}{\tau} \end{aligned}$$

Transmissionskoeffizienten aus den Tabellen von EMMERICH<sup>6)</sup>:

$$V_0 = 42 \dots 43 \text{ MeV}; r_0 = 1,25 f; \lambda = 0,37 \dots 0,40; \tau = 0,84 f.$$

Die verwendeten Werte für  $T_l$  sind in Tabelle 1 zusammengestellt.

$W(\theta_n, \theta_\gamma)$  ist mit der korrigierten Korrelationsformel<sup>2)3)</sup> auf einer Rechenmaschine IBM 650 ermittelt worden. Figur 1A bis E zeigt die Resultate für das 845 keV-Niveau von  $^{56}\text{Fe}$ , Figur 2 die Ergebnisse für das 1,368-MeV-Niveau von  $^{24}\text{Mg}$ .  $W$  ist so normiert, dass  $W(90^\circ, 90^\circ) = 1$ . Die Äquidistanz der Höhenlinien beträgt 0,1. Ein Vergleich der Korrela-

Tabelle 1

Zusammenstellung der Transmissionskoeffizienten zur Berechnung der Korrelationsfunktion  $W(\theta_n', \theta_\gamma)$  auf Grund des statistischen Modells. Die Potentiale sind im Text erläutert.  $E_n$  = Energie der einfallenden Neutronen.  $\sigma_{\text{rel}}$  ist die unnormierte Korrelationsfunktion für  $\theta_n' = 90^\circ$ ,  $\theta_\gamma = 90^\circ$ , ausgedrückt in willkürlichen Einheiten

Potentialform	$E_n$ (MeV)	$T_0$	$T_1$	$T_2$	$T'_0$	$T'_1$	$T'_2$	$\sigma_{\text{rel}}$ ( $90^\circ$ , $90^\circ$ )
<b><math>^{56}\text{Fe}</math>, <math>Q = -0,845 \text{ MeV}</math></b>								
Kastenpotential $\xi = 0,20$ . . . . .	3,300	0,974	0,448	0,456	0,758	0,378	0,363	2,388
Kastenpotential $\xi = 0,04$ . . . . .	3,300	0,686	0,134	0,242	0,786	0,108	0,232	1,394
abgerundet, Volumabsorption . .	3,300	0,958	0,594	0,733	0,932	0,519	0,613	3,460
abgerundet, Oberflächenabsorption	3,300	0,909	0,477	0,790	0,931	0,430	0,740	3,500
abgerundet, Oberflächenabsorption	2,000	0,934	0,394	0,668	0,950	0,275	0,422	2,817
<b><math>^{24}\text{Mg}</math>, <math>Q = -1,368 \text{ MeV}</math></b>								
abgerundet, Volumabsorption . .	3,450	0,510	0,971	0,186	0,448	0,872	0,090	1,888
abgerundet, Oberflächenabsorption	3,450	0,489	0,993	0,288	0,443	0,971	0,134	2,220

tionsflächen  $A$  bis  $D$  von Figur 1 lässt erkennen, wie gering die Unterschiede sind trotz der verschiedenen Modellannahmen. Die Funktionen werden einander besonders ähnlich, wenn ihnen abgerundete Potentiale zugrunde liegen, die den gemessenen totalen und differentiellen Wirkungsquerschnitt gut wiedergeben. (Fig. 1C und 1D bzw. 2A und 2B.) Dies ist umso bemerkenswerter, als in den entsprechenden  $T_l$  Unterschiede bis zu 20% auftreten.  $W(\theta_n', \theta_\gamma)$  ist auch nur schwach abhängig von der Neutronenenergie und vom Kernradius, wie aus den Figuren 1C, 1E, 2A und 2B hervorgeht.

*Anmerkung beim Druck.* Die Arbeiten von SATCHLER<sup>1) 2)</sup>, die unsern Rechnungen zugrundeliegen, enthalten nur Bahndrehimpulse  $l \leq 2$ . Unsere kürzlich durchgeführten Abschätzungen über den Einfluss der höhern Bahndrehimpulse zeigen aber, dass die Vernachlässigung von  $l = 3$  und  $l = 4$  den totalen unelastischen Wirkungsquerschnitt von  $^{24}\text{Mg}$  bei  $E_n = 3,45 \text{ MeV}$  um 29% erniedrigt. (Bei  $^{56}\text{Fe}$  ist der Einfluss geringer.) Dies bedingt eine gewisse Vorsicht in der Interpretation der Resultate. U. a. die Unempfindlichkeit der Korrelationsfunktion auf

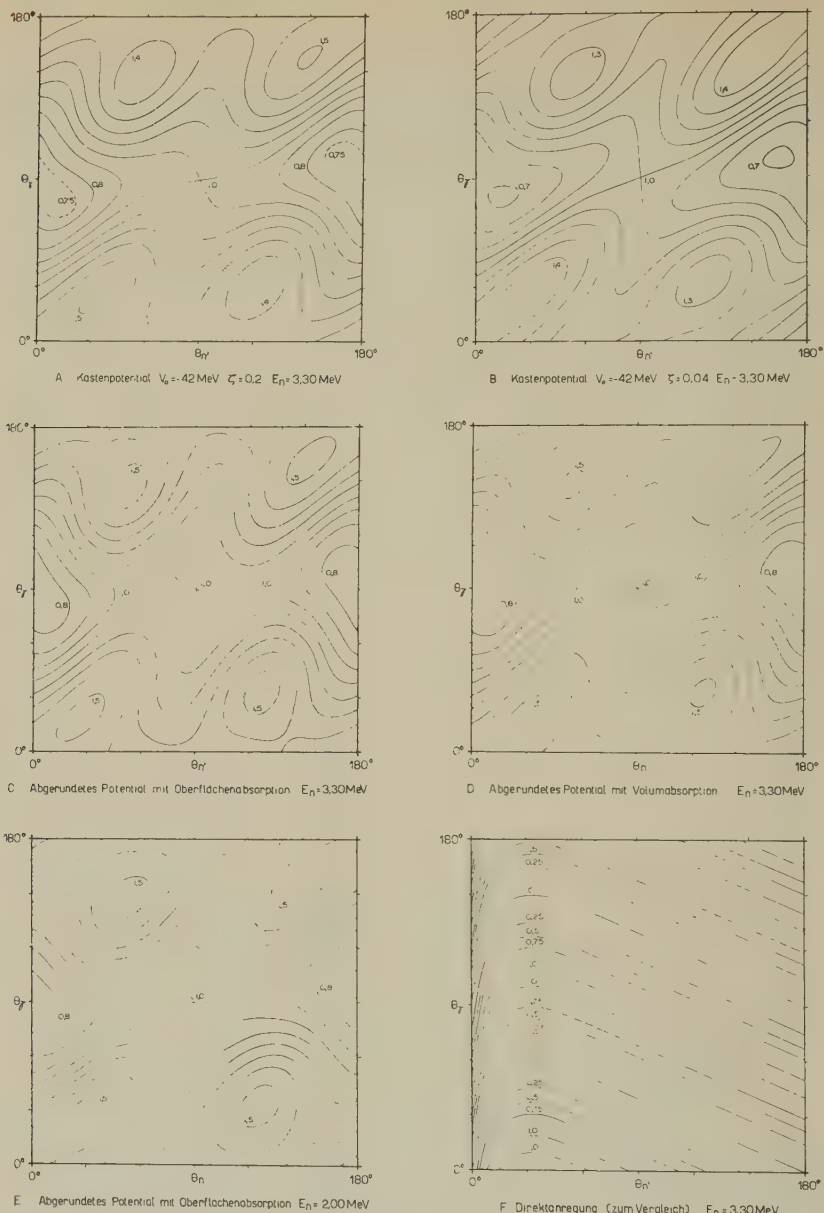


Fig. 1.  $n'$ - $\gamma$ -Korrelationsfunktion  $W(\theta_{n'}, \theta_\gamma)$  für  $^{56}\text{Fe}(n, n'\gamma)$ ,  $Q = -0.845 \text{ MeV}$ .  
Fig. A-E nach dem statistischen Modell für verschiedene optische Potentiale bei einer Primärenergie der Neutronen  $E_n = 3.30 \text{ MeV}$  bzw.  $E_n = 2.00 \text{ MeV}$ .

Fig. F.  $W(\theta_{n'}, \theta_\gamma)$  bei Direktanregung nach SATCHLER<sup>7)</sup> für  $E_n = 3.30 \text{ MeV}$ .

Die Voraussetzungen sind im Text erläutert. Schichtliniendarstellung.

Änderungen an einzelnen  $T_l$  deutet aber darauf hin, dass die oben gezogenen allgemeinen Schlüsse trotz unserer Approximation ihre Berechtigung haben. – Rechnungen unter Berücksichtigung der höhern Bahndrehimpulse wären vom experimentellen Standpunkt aus sehr erwünscht.

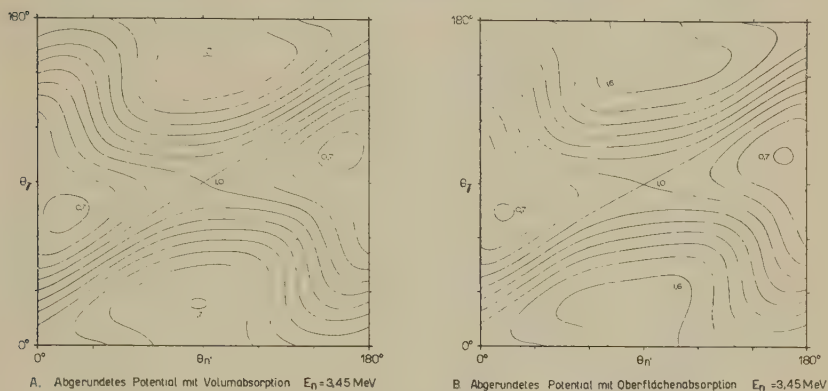


Fig. 2

$n'\gamma$ -Korrelationsfunktion  $W(\theta_{n'}, \theta_\gamma)$  für  $^{24}\text{Mg}(n, n'\gamma)$ ,  $Q = -1,368$  MeV, nach dem statistischen Modell für zwei optische Potentiale bei einer Energie der einfallenden Neutronen  $E_n = 3,45$  MeV. Schichtliniendarstellung

### 3. Korrelationsfunktion bei Direktanregung

Figur 1F zeigt zum Vergleich  $W(\theta_{n'}, \theta_\gamma)$  für das einfache Modell von Direktanregung nach SATCHLER<sup>7)</sup>, das auf folgenden Annahmen basiert:

Ebene Born'sche Approximation.

Nukleon-Nukleon Wechselwirkung durch  $\delta$ -Funktion dargestellt.

Oberflächen-Wechselwirkung.

Der Unterschied zur Korrelationsfunktion bei Zwischenkernbildung ist augenfällig. Für festen Neutronenstreuwinkel  $\theta_{n'}$  lässt sich leicht zeigen, dass  $W$  als Funktion von  $\theta_\gamma$  symmetrisch bezüglich des Rückstosswinkels  $\theta_R$  ist. Andere Theorien der Direktanregung<sup>8)</sup> ergeben ähnliche Resultate.

### 4. Zusammenfassung

Die Berechnungen der Neutron-Gamma-Korrelationsfunktion nach dem statistischen Modell haben ergeben, dass  $W(\theta_{n'}, \theta_\gamma)$  unter den oben genannten Bedingungen für mittlere Kerne recht wenig von der Form des zugrundegelegten optischen Potentials abhängt. Umso schärfer tritt dafür der Unterschied gegenüber einer Korrelationsfunktion bei Direktanregung hervor. Diese Tatsachen erhöhen die Aussagekraft von Korrelations-experimenten, indem es nur schwer möglich sein wird, theoretische Korre-

lationsflächen durch Variation der Parameter eines optischen Modells an die gemessenen Werte anzupassen, wenn im Experiment gleichzeitig Zwischenkern- und Direktanregung vorliegen.

Herrn Dr. ERIC SHELDON danken wir für alle bereitwillige Hilfe herzlich. Der Firma IBM, Extension Suisse, Zürich, gebührt unser verbindlicher Dank für ihre grosszügige Unterstützung.

#### *Literatur*

- 1) G. R. SATCHLER, *Phys. Rev.* **94**, 1304 (1954).
- 2) G. R. SATCHLER, private Mitteilung.
- 3) F. D. SEWARD, *Phys. Rev.* **114**, 514 (1959).
- 4) H. FESHBACH, C. E. PORTER und V. F. WEISSKOPF, *Phys. Rev.* **96**, 448 (1954).
- 5) R. G. SCHRANDT, J. R. BEYSTER, M. WALT und E. W. SALMI, Los Alamos Report LA-2099 (1957).
- 6) W. S. EMMERICH, Westinghouse Research Report 6-94511 - R 19 (1958).
- 6) G. R. SATCHLER, *Proc. Phys. Soc. A* **68**, 1037 (1955).
- 7) C. A. LEVINSON und M. K. BANERJEE, *Ann. Phys. (N. Y.)* **2**, 471 (1957); **2**, 499 (1957); **3**, 67 (1958).

### **Ein Trochoidenmassenspektrometer für kleine Edelgasmengen**

VON P. EBERHARDT\*)

(School of Science and Engineering University of California, La Jolla)

Zur Messung von kleinen Edelgasmengen (He, Ne, A), wie zum Beispiel aus Meteoriten oder für spallation Untersuchungen an Targets, wird ein Massenspektrometer mit hoher Empfindlichkeit und kleinem Untergrund (Kohlenwasserstoffe, HCl usw.) benötigt (REYNOLDS<sup>1</sup>), NIER<sup>2</sup>). Hohe Empfindlichkeit kann durch statischen Betrieb, kleiner Untergrund durch sorgfältige Auswahl der verwendeten Materialien und Ultrahochvakuumtechnik erreicht werden.

Ein gekreuztes homogenes elektrisches und magnetisches Feld ist Richtungs- und Energiefokussierend (BLEAKNEY und HIPPLE<sup>3</sup>). Die Ionen durchlaufen dabei Trochoidenbahnen. Ein Trochoidenmassenspektrometer, das den speziellen Anforderungen für Edelgasmessungen entspricht, wurde entwickelt und gebaut. Abbildung 1 zeigt einen Schnitt durch das Massenspektrometer. Die Kleinheit des ganzen Systems ist besonders günstig für statischen Betrieb (kleines Volumen, kleine Gesamtoberfläche). Es wurden ausschliesslich Inconel und Quarz als Materialien

---

\*) Jetzige Adresse: Physikalisches Institut der Universität Bern, Bern.



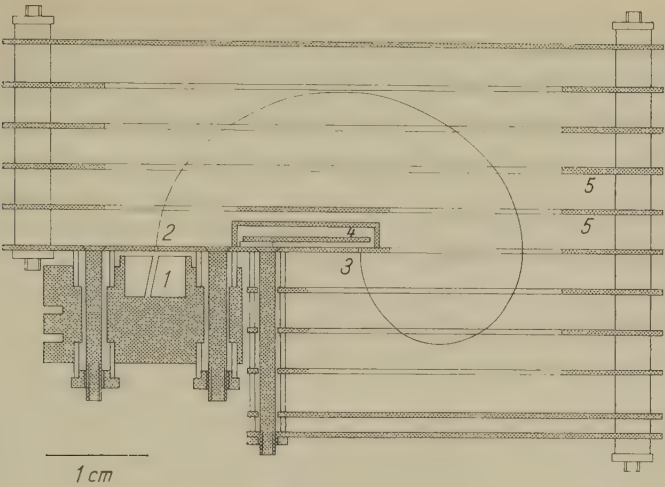


Fig. 1

Schnitt durch das Trochoidenmassenspektrometer  
1 Ionenquelle, 2 Eintrittsspalt, 3 Austrittsspalt, 4 Auffänger, 5 Platten zur Erzeugung des elektrischen Feldes

Tabelle 1

Charakteristiken und Betriebsdaten des Trochoidenmassenspektrometers

Spaltabstand . . . . .	2 cm
Eintrittsspaltbreite . . . . .	0,13 mm
Austrittsspaltbreite . . . . .	0,18 mm
Magnetisches Feld . . . . .	6000 Gauss
Elektrisches Feld (für Masse 20) . . . . .	55 Vcm <sup>-1</sup>
Auflösungsvermögen . . . . .	60
Abnahme der Intensität bei statischem Betrieb . . . . . (für <sup>20</sup> Ne)	< 0,3% h <sup>-1</sup>
Vakuum . . . . .	< 10 <sup>-9</sup> Torr

Tabelle 2

Nachweisgrenze und Untergrund des Trochoidenmassenspektrometers

Isotop	Nachweisgrenze cc STP	Untergrund cc STP
<sup>20</sup> Ne, <sup>21</sup> Ne, <sup>22</sup> Ne . . . . .	10 <sup>-10</sup>	< 2×10 <sup>-10</sup>
<sup>36</sup> Ar, <sup>38</sup> Ar . . . . .	10 <sup>-11</sup>	< 3×10 <sup>-11</sup>
<sup>40</sup> Ar . . . . .	10 <sup>-11</sup>	~ 5×10 <sup>-11</sup>

verwendet. In Tabelle 1 sind die wichtigsten Charakteristiken und Betriebsdaten zusammengefasst und in Tabelle 2 die erreichten Empfindlichkeiten. Das Massenspektrometer wurde unter anderem zu Neon Bestimmungen in Meteoriten<sup>4)</sup> verwendet und zeigte eine sehr hohe Betriebssicherheit.

#### *Literatur*

- <sup>1)</sup> J. H. REYNOLDS, Rev. Sci. Instr. 27, 928 (1956).
- <sup>2)</sup> A. O. NIER, Advances in Mass Spectrometry (Pergamon Press, London 1959), S. 507.
- <sup>3)</sup> W. BLEAKNEY und J. A. HIPPLE, Phys. Rev. 53, 521 (1938).
- <sup>4)</sup> P. und A. EBERHARDT, Helv. Phys. Acta, im Druck.

### **Tritium- und Helium-Gehalte in Meteoriten**

von J. GEISS, B. HIRT und H. OESCHGER

Physikalisches Institut der Universität Bern)

Tritium-Gehalte in Meteoriten können zur Abschätzung der Intensität der kosmischen Strahlung im Weltraum<sup>1)2)</sup> und zusammen mit den He<sup>3</sup> Konzentrationen zur Bestimmung der Strahlungsalter der Meteorite benutzt werden<sup>3)4)</sup>. Im Gegensatz zur Edelgasextraktion, die auf konventionelle Weise durchgeführt wurde<sup>5)</sup>, bereitet die vollständige Extraktion von Tritium aus Meteoriten grosse Schwierigkeiten. Wir haben das Tritium durch Hochfrequenzheizung in Degussit-Tiegeln (für Eisenmeteorite) und in Graphit- oder Molybdän-Tiegeln (für Steinmeteorite) durch Schmelzen extrahiert, unter Zugabe von 40 cm<sup>3</sup> STP tritiumfreien Wasserstoffs als carrier. Der gewonnene Wasserstoff wurde zu H<sub>2</sub>O oxydiert, vom CO<sub>2</sub> getrennt (vgl. <sup>3)</sup>) und abgeschmolzen. Diese Prozedur wurde jedesmal mit neuem carrier 4- bis 5mal wiederholt, wobei vom 3. Male an das den Tiegel umgebende Quarzgefäss und die darauf kondensierten Sublimate auf etwa 500–600° erhitzt wurden. Durch Aktivitätsmessung wurde festgestellt, dass erst nach der 3. oder 4. Fraktion das Tritium vollständig extrahiert ist. Auf Grund dieser Extraktionskontrollen, der Reproduzierbarkeit der Ergebnisse und auf Grund des weiter unten beschriebenen Additionsexperiments glauben wir, dass der Gesamtfehler der Tritium-Messung kleiner als 10% ist. Weitere Angaben über die Extraktions- und Separationsprozedur sowie über die Bereitung des Füllgases für die Zählung werden in einer anderen Arbeit gegeben.

Gezählt wurde in einem Proportional-Antikoinzidenzzählrohr vom Typ des von HOUTERMANS und OESCHGER<sup>6)</sup> beschriebenen, mit 7 mg/cm<sup>2</sup> Folie als Zwischenwand. Dem Wasserstoff von 10–50 mm Hg Druck

wurden 500 mm Hg Äthylen zugesetzt. Im Tritiumkanal wurden nur Impulse registriert, die einem Energieverlust von 1–18 keV entsprechen. Der Nulleffekt in diesem Kanal betrug 0,58 cpm bei einem aktiven Zählvolumen von 1,5 Litern. Die Apparatur wurde mit Tritium-Standards geeicht.

Die Isotopenanalysen des He wurden mit einem 30cm-60°-Massenspektrometer ohne Quellenmagnet durchgeführt, unter Verwendung eines geschlossenen Zirkulationssystems. Die Massendiskrimination des Gerätes einschliesslich der des Multipliers wurde laufend durch die Messung absolut geeichter  $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Mischungen bestimmt. Die  $^3\text{He}$ - und  $^4\text{He}$ -Gehalte in den Meteoriten wurden durch 2 Extraktionen mit der isotopic-dilution-Methode bestimmt, indem bei einer Extraktion  $\text{He}^4$  als tracer hinzugegeben wurde.

Die Ergebnisse der Messungen sind in den Tabellen 1 und 2 aufgeführt, die He-Werte für die Meteorite Elenovka und Kunashak stimmen be-

Tabelle 1

Tritiumkonzentrationen. Ch = Chondrit, Fe = Eisenmeteorit. Angegeben ist nur der statistische Fehler der Zählung. Für den Gesamtfehler siehe Text.

Meteorit	Falljahr	Tritiumgehalt dpm/Gramm extrapoliert auf Fallzeit
Monte das Fortes (Ch) . . . . .	1950	0,54 $\pm$ 0,015
Kunashak (Ch) . . . . .	1949	0,46 $\pm$ 0,015
Elenovka (Ch) . . . . .	1951	0,40 $\pm$ 0,01
Elenovka Fe-Phase . . . . .		0,28 $\pm$ 0,025
Elenovka Steinphase . . . . .		0,425 $\pm$ 0,01
Sikhote Alin (Fe) . . . . .	1947	0,001 $\pm$ 0,004
Mocs (Blindversuch) (Ch) . . . . .	1882	-0,005 $\pm$ 0,008
Additionsversuch . . . . .		9,30 $\pm$ 0,21
(Mocs + 9,05 $\pm$ 0,2 dpm $^3\text{H}$ ) . . . . .		

friedigend mit denen von GERLING und LEVSKII<sup>7)</sup> überein. Der in einer früheren Mitteilung<sup>8)</sup> gegebene, niedrigere Tritium-Wert im Meteoriten Monte das Fortes wurde in einem anderen Stück dieses Meteoriten erhalten. Variationen der Tritiumkonzentrationen innerhalb eines Meteoriten können durch Abschirmeffekte oder durch Erhitzung der Randzone erklärt werden. Bei der früheren Messung konnten wir jedoch die Tritium-Extraktion noch nicht so genau kontrollieren, so dass der tiefere Wert – jedenfalls zum Teil – auch auf unvollständige Extraktion zurückgeführt werden kann.

Tabelle 2

Heliumgehalte,  $^4\text{He}$ -Alter und Strahlungsalter.  $^4\text{He}$ -Alter wurden berechnet unter der Annahme von  $1,1 \cdot 10^{-8}$  g/g Uran in Chondriten<sup>13)</sup>, einem Th/U-Verhältnis von 3,6<sup>14)</sup> und einem Spallation Produktionsverhältnis  $^4\text{He}/(^3\text{He} + ^3\text{H})$  von 3.

Meteorit	$^3\text{He}$	$^4\text{He}$	$^4\text{He}$ -Alter	$^3\text{He}/^3\text{H}$ Alter
	(10 <sup>-6</sup> cm <sup>3</sup> STP/Gramm)		(in 10 <sup>6</sup> Jahren)	
Monte das Fortes . .	0,50	15,8	4000	23,6
Kunashak . . . .	0,05	1,5	500	2,8
Elenovka . . . . .	0,37	16,0	4000	23,6

Die Tabelle 1 enthält Tritium-Blindversuche am 1882 gefallenen Meteoriten Mocs, die mit dem Nulleffekt übereinstimmen. Ausserdem ist ein Additionsversuch aufgeführt, bei dem zu dem Meteoriten Mocs eine bekannte Menge tritiumhaltigen Wassers hinzugegeben wurde. Es ergibt sich innerhalb der Fehlergrenzen vollständige Wiedergewinnung des Tritiums. Für den Chondriten Elenovka wurde das Tritium für die Eisen- und die Steinphase auch getrennt gemessen. Da beide Phasen ursprünglich gemischt waren, müssen sie exakt die gleiche Strahlungsmenge erhalten haben. Aus dem gemessenen Aktivitätsverhältnis pro Gramm von 0,66 ergibt sich ein Verhältnis der mittleren Wirkungsquerschnitte in Eisen und Stein von  $\sigma_{\text{Fe}}/\sigma_{\text{Stein}} = 1,7$ , das mit dem Verhältnis der geometrischen Wirkungsquerschnitte innerhalb der Messfehler übereinstimmt. Hieraus darf geschlossen werden, dass Tritiumverluste in der Eisenphase dieses Meteoriten nicht gross sein können.

Andererseits konnte in dem 1947 gefallenen Eisenmeteoriten Sikhote Alin – in Übereinstimmung mit FIREMAN<sup>9)</sup> – kein Tritium gefunden werden, obwohl erhebliche Mengen  $^3\text{He}$  und  $^3\text{H}$  festgestellt wurden. Eine eindeutige Erklärung für das Fehlen von Tritium in diesem Meteoriten kann noch nicht gegeben werden.

Eine Abschätzung der Intensität der kosmischen Strahlung aus den Tritium-Konzentrationen in Steinmeteoriten erscheint in einer anderen Arbeit. Die für die drei Chondrite in der Tabelle 2 berechneten Strahlungsaltern basieren auf der Annahme eines Produktionsverhältnisses  $^3\text{H}/^3\text{He} = 1:1$ . Es ergeben sich für alle drei Chondrite Strahlungsalter von der Grössenordnung von 10<sup>7</sup> Jahren, in Übereinstimmung mit Messungen von GOEBEL u. a.<sup>1)12)</sup> und Abschätzungen von Strahlungsaltern von Chondriten aus dem  $^{38}\text{A}$ -Gehalt<sup>10)</sup> oder dem  $^3\text{He}$ -Gehalt<sup>11)</sup>.

Unsere Untersuchungen wurden ermöglicht durch die Überlassung von Meteoritenproben durch Herrn Prof. L. KRINOV vom Meteoritenkomitee der Akademie der Wissenschaften der USSR und durch Herrn Prof. A. DE COSTELLO BRANCO, Direktor des Servicos Geologicos de Portugal.

## Literatur

- <sup>1)</sup> K. GOEBEL und P. SCHMIDLIN, *Geochim. et Cosmochim. Acta* **17**, 342 (1959).
- <sup>2)</sup> J. GEISS und H. OESCHGER, *Proceedings of the First Int. Space Symposium*, Nice, Jan. 1960, North Holland Publishing Comp.
- <sup>3)</sup> F. BEGEMANN, J. GEISS und D. C. HESS, *Phys. Rev.* **107**, 540 (1957).
- <sup>4)</sup> E. L. FIREMAN und D. SCHWARZER, *Geochim. et Cosmochim. Acta* **11**, 252 (1957).
- <sup>5)</sup> J. GEISS und D. C. HESS, *Astrophys. Journ.* **127**, 224 (1958).
- <sup>6)</sup> F. G. HOUTERMANS und H. OESCHGER, *Helv. Phys. Acta* **28**, 464 (1955); **31**, 117 (1958).
- <sup>7)</sup> E. K. GERLING und L. K. LEVSKII, *Dokl. Akad. Nauk USSR* **110**, 750 (1956).
- <sup>8)</sup> J. GEISS, H. OESCHGER und P. SIGNER, *Helv. Phys. Acta* **31**, 322 (1958).
- <sup>9)</sup> E. L. FIREMAN und J. DEFELICE, *Geochim. et Cosmochim.* **18**, 183 (1960).
- <sup>10)</sup> J. GEISS, *Chimia* **11**, 349 (1957).
- <sup>11)</sup> P. EBERHARDT und D. C. HESS, *Astrophys. Journ.* **131**, 38 (1960).
- <sup>12)</sup> K. GOEBEL, P. SCHMIDLIN und J. ZÄHRINGER, *Z. Naturf.* **14a**, 996 (1959).
- <sup>13)</sup> H. HAMAGUCHI, G. W. REED und A. TURKEVICH, *Geochim. et Cosmochim. Acta* **12**, 337 (1957).
- <sup>14)</sup> G. L. BATE, J. R. HUIZENGA und H. A. POTRATZ, *Geochim. et Cosmochim. Acta* **8**, 171 (1959).

## Neon und andere Edelgase in Steinmeteoriten

von P. und A. EBERHARDT\*)

(School of Science and Engineering University of California, La Jolla)

Der Gehalt und die Isotopenzusammensetzung von Neon wurde in 8 Steinmeteoriten gemessen. Tabelle 1 zeigt die Resultate. Alles gefundene  $^{21}\text{Ne}$  ist durch – von der kosmischen Strahlung induzierte – Spallation entstanden. Ebenso das  $^{22}\text{Ne}$  und  $^{20}\text{Ne}$ , ausgenommen bei den beiden Achon-

Tabelle 1  
Neon in Steinmeteoriten

Meteorit	Typ	$\frac{^{21}\text{Ne}}{^{22}\text{Ne}}$	$\frac{^{20}\text{Ne}}{^{22}\text{Ne}}$	$\frac{^{21}\text{Ne}}{\times 10^{-8} \text{ cc STP/g}}$
		%	%	
Holbrook . . . . .	Chondrit	95,5	92,0	6,70
Richardton . . . . .	Chondrit	95,5	91,5	9,50
St. Michel . . . . .	Chondrit	95,0	92,0	8,20
Bjurböle . . . . .	Chondrit	93,5	92,5	4,45
Furnas County . . . . .	Achondrit	93,5	90,0	58,5
Olivin von Brenham . . . . .	Pallasit	106,0	94,0	36,5
Goalpara . . . . .	Achondrit	87,5	98	8,8
Novo Urei . . . . .	Achondrit	90,0	129	2,7
Atmosphärisches Neon		2,9	1030	—

\*) Jetzige Adresse: Physikalisches Institut der Universität Bern, Bern.



dritten Novo Urei und Goalpara, wo ein  $^{20}\text{Ne}$ -Überschuss darauf hindeutet, dass kleine Mengen von Neon mit ungefähr atmosphärischer Isotopenzusammensetzung bei der Bildung des Meteoriten in diesen eingebaut wurden (primeval Gas, GERLING und LEVSKII<sup>1)</sup>).

Tabelle 2 zeigt einen Vergleich des  $^{21}\text{Ne}$  mit dem ebenfalls durch Spallation entstandenen  $^3\text{He}$  und  $^{38}\text{A}$ . Dabei ist die verschiedene chemische Zusammensetzung der einzelnen Meteorite zu berücksichtigen.  $^3\text{He}$  wird

Tabelle 2

$^3\text{He}/^{21}\text{Ne}$  und  $^3\text{He}/^{38}\text{A}$ -Verhältnisse in Steinmeteoriten ( $^{38}\text{A}$ -Gehalt von GEISS und HESS<sup>4)</sup>,  $^3\text{He}$ -Gehalt von EBERHARDT und HESS<sup>3)</sup>) chemische Zusammensetzung von UREY und CRAIG<sup>5)</sup>)

	$\frac{^3\text{He}}{^{21}\text{Ne}}$	$\frac{^3\text{He}}{^{38}\text{A}}$	Ca + K Gehalt	Fe + Ni + Co + Cr + Mn + Ti- Gehalt	Na + Al + Mg + Si Gehalt
			Atomprozent		
Holbrock . . . . .	4,1	26	} ,95	} 12	} 34
Richardton . . . . .	3,5	29			
St. Michel . . . . .	3,8	30			
Bjurböle . . . . .	3,7	14			
Furnas County . . . .	3,8	115	0,4	0,7	39
Olivin von Brenham .	2,9	130	0,0	4,2	40
Pasamonte . . . . .	—	9	4,2	6,8	
Shergotty . . . . .	—	11	4,5	7,0	

aus allen im Meteoriten vorkommenden Elementen gebildet,  $^{21}\text{Ne}$  hauptsächlich aus  $\text{Na} + \text{Al} + \text{Mg} + \text{Si}$ ,  $^{38}\text{A}$  aus  $\text{Ca} + \text{K}$  einerseits und  $\text{Fe} + \text{Ni} + \text{Co} + \text{Cr} + \text{Mn} + \text{Ti}$  anderseits. Aus den gemessenen Werten kann entnommen werden, dass der Wirkungsquerschnitt des  $\text{Ca} + \text{K}$  für die Bildung von  $^{38}\text{A}$  ungefähr 10mal grösser ist als der entsprechende Wirkungsquerschnitt von  $\text{Fe} + \text{Ni} + \text{Co} + \text{Cr} + \text{Mn} + \text{Ti}$ . Unter Zuhilfenahme von radiochemischen Target-Daten<sup>2)</sup> kann daraus geschlossen werden, dass die mittlere Energie der kosmischen Strahlung im Meteoriten ungefähr 1 BeV war<sup>3)</sup>.

Das konstante  $^3\text{He}/^{21}\text{Ne}$ -Verhältnis zeigt, dass die  $^{21}\text{Ne}$ -Strahlungsalter mit den  $^3\text{He}$ -Strahlungsalter übereinstimmen und schliesst mögliche Diffusionsverluste aus.

#### Literatur

- 1) E. K. GERLING und L. K. LEVSKII, Dokl. Akad. Nauk. SSSR 170, 750 (1956).
- 2) S. G. RUDSTAM, Phil. Mag. 46, 344 (1955).
- 3) P. EBERHARDT und D. C. HESS, Astrophys. J. 131, 38 (1960).
- 4) J. GEISS und D. C. HESS, Astrophys. J. 127, 224 (1958).
- 5) H. C. UREY und H. CRAIG, Geochim et Cosmochim. Acta 4, 36 (1953).

## Über die Datierung von Keramik und Ziegel durch Thermolumineszenz

VON N. GRÖGLER, F. G. HOUTERMANS UND H. STAUFFER  
(Physikalisches Institut der Universität Bern)

Wie F. DANIELS<sup>1)</sup> bemerkt hat, lässt sich die Thermolumineszenz immer dann zur Datierung des Zeitpunktes der letzten Erhitzung verwenden, wenn wir es mit Materialien zu tun haben, von denen wir sicher wissen, dass sie zu einem bestimmten Zeitpunkt auf eine Temperatur von etwa über 500°C erhitzt worden sind und seither im wesentlichen auf Zimmertemperatur geblieben sind. Neben vulkanischen Materialien wie Laven (Basalte, Obsidian usw.) ist dies bei künstlich gebrannten Tonmaterialien wie Keramik und Ziegeln der Fall. Figur 1 gibt die Thermolumineszenz-glow-Kurven von zwei keramischen Materialien wieder, die mit der früher beschriebenen Apparatur<sup>2)</sup> erhalten wurden. Die ausge-

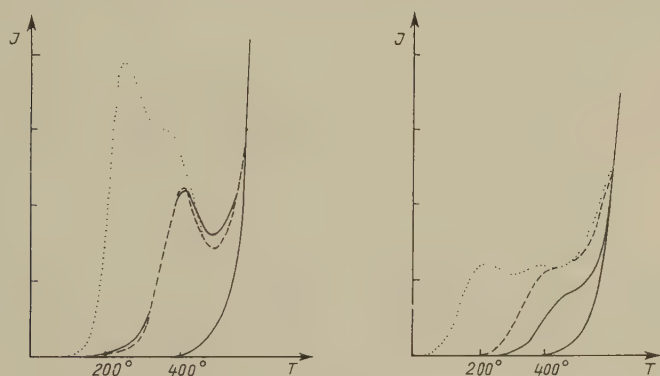


Fig. 1

Früheste Keramik von Griechenland  
vor 3500 v. Chr.

— natürlich  
... künstlich, 6000 r  
--- künstlich, 6000 r getempert

Spiez Burg, Späte Bronze  
ca. 1300-1000 v. Chr.

— natürlich  
... künstlich, 3000 r  
--- künstlich, 3000 r getempert

zogenen Kurven geben die glow-Kurven der natürlichen Thermolumineszenz, die gestrichelten Kurven, die der nach Ausheizen der natürlichen Thermolumineszenz durch Bestrahlung mit 6000 bzw. 3000 r erhaltenen wieder. Durch Tempern lässt sich erreichen, dass die künstlich angeregte glow-Kurve nahezu die gleiche Form hat wie die natürliche Kurve, wodurch der Tatsache Rechnung getragen wird, dass auch bei Zimmertemperatur ein gewisses fading die Thermolumineszenz bei niedriger Temperatur, also den unteren Teil der glow-Kurve beeinträchtigt. Durch

Vergleich der Dosis, die zur Erreichung der durch die Fläche der natürlichen glow-Kurve oberhalb einer willkürlich gewählten Temperatur von etwa 300°C gegeben ist, mit der gemessenen natürlichen  $\alpha$ -Aktivität des Materials lässt sich im Prinzip das Brennalter berechnen. Bei Proben bekannten Alters ergab sich recht gute Proportionalität zwischen den so berechneten Dosis-Altern und den bekannten historischen Altern der Proben. Mit der Empfindlichkeit unserer Apparatur gaben noch Keramik-Proben eines Alters von etwa 1900 Jahren eine messbare Thermolumineszenz, während rezente Proben keine Thermolumineszenz zeigen.

#### *Literatur*

- 1) F. DANIELS, CH. A. BOYD und D. F. SAUNDERS, Thermoluminescence as a research tool, *Sci.* 117, 343-349 (1953).
- 2) F. G. HOUTERMANS, E. JÄGER, M. SCHÖN und H. STAUFFER, Messung der Thermolumineszenz als Mittel zur Untersuchung der thermischen und der Strahlungsgeschichte von natürlichen Mineralien und Gesteinen, *Ann. Phys.* 20, 283-292 (1957).

### **Registrierung der Nukleonenkomponente der kosmischen Strahlung am Jungfraujoch**

VON F. G. HOUTERMANS, H. DEBRUNNER und W. LINDT  
(Physikalisches Institut der Universität Bern)

Seit Oktober 1958 registrierten wir mittels eines Neutron Monitoring Pile nach SIMPSON<sup>1)</sup> die Nukleonenkomponente der kosmischen Strahlung. Die Anlage war in der Hochalpinen Forschungsstation Jungfraujoch in einer Höhe von 3450 m aufgestellt und weist eine mittlere Zählrate von  $3,4 \cdot 10^5$  cph oder  $8,2 \cdot 10^6$  cpd auf. Die relativen statistischen Fehler betragen somit 0,2% für die Stundenwerte und 0,04% für die Tageswerte.

Bis jetzt wurden speziell die Daten vom 1. 10. 1958 bis 31. 7. 1959 auf eine 24-Stundenperiodizität und auf Forbush decreases analysiert. Die 24-Stundenperiodizität zeigt ein Minimum der Strahlungsintensität zwischen 00 h und 03 h Ortszeit und ein Maximum zwischen 14 h und 17 h. Die Differenz zwischen Maximal- und Minimalwert beträgt 0,795%, der statistische Fehler 0,01%. Die harmonische 24-Stundenperiode weist eine Amplitude von 0,34% auf und die harmonische 12 Stundenperiode eine solche von 0,07%. Weitere Oberschwingungen wurden nicht untersucht, da ihre Amplituden sich von den statistischen Unsicherheiten nicht mehr wesentlich unterscheiden. Es wurde versucht, an Hand unserer Daten und der Resultate von Terrella-Experimenten von BRUNBERG<sup>2)</sup> die «virtuelle» Quelle der die Tagesschwankung verursachenden anisotropen kos-

mischer Strahlung zu lokalisieren. Die Quelle scheint die scheinbare jährliche Bewegung der Sonne um die Erde um  $\sim 145$  Tage verfrüht mitzumachen und mit der Sonne einen Winkel zwischen  $135^\circ$  und  $155^\circ$  einzuschliessen.

Für die Forbush decreases konnte eine Korrelation mit solaren Eruptionen der Stärke 3+ und mit schwächeren Eruptionen, die in der Nähe der scheinbaren Sonnenmitte ausbrechen, festgehalten werden. Dabei konnte weiter die Korrelation zwischen der säkularen Beschleunigung künstlicher Erdsatelliten und der Intensität der kosmischen Strahlung während Forbush decreases bestimmt werden.

#### *Literatur*

- 1) J. A. SIMPSON, Special Report: Cosmic Radiation, Neutron Intensity Monitor, University Monitor, University of Chicago, 1955.
- 2) E. Å. BRUNBERG und A. DATNER, *Tellus* 5, 135, 269 (1953).
- 3) H. DEBRUNNER und F. G. HOUTERMANS, Correlation between Forbush Decreases of Cosmic Radiation and Satellite Drag, First International Space Science Symposium, Nice, France, January 1960 to be published by the North Holland Publishing Co., Amsterdam.
- 4) H. DEBRUNNER, Dissertation, Registrierung der Nukleononenkomponente der kosmischen Strahlung mittels eines «Simpson Neutron Monitoring Pile» auf Jungfrauoch, Universität Bern, 1960.

### **Über die Erfüllung der «Maser»-Bedingung bei Zerfalls-Spektren von Molekülen**

von F. G. HOUTERMANS

(Physikalisches Institut der Universität Bern)

Entladungs-Plasmen, bei welchen Zerfalls-Spektren von einem Molekül emittiert werden, die durch Übergang eines höheren angeregten Molekularzustandes in eine Abstossungspotentialkurve zweier Atome zustande kommen, erfüllen automatisch die «Maser»-Bedingung. Dies gilt zum Beispiel für das 1865 von PLÜCKER und HITTORF<sup>1)</sup> entdeckte grosse Wasserstoffkontinuum zwischen  $4000 \text{ \AA}$  und  $1200 \text{ \AA}$ . Nach WINAUS und STUECKELBERG<sup>2)</sup> ist dieses als Übergang aus einem Triplett  $^3\Sigma_g$ -Zustand des Moleküls in den Heitler-Londonschen Abstossungsast der Potentialkurven zweier Wasserstoffatome zu deuten. Die Population des Endzustandes ist praktisch völlig zu vernachlässigen, da dieser aus 2 mit parallelem Spin und einer relativen kinetischen Energie von mehreren eV auseinander fliegenden neutralen Wasserstoffatomen besteht. Der angeregte Triplett  $^3\Sigma_g$ -Zustand wird hingegen durch Elektronenstoss aus dem molekularen Grundzustand laufend angeregt, zeigt also in der Ent-

ladung eine endliche Population  $N_2$ . Unter solchen Bedingungen muss der Einsteinsche Prozess der erzwungenen Emission zur Ausbildung einer Lichtlawine führen, die sich als negative Absorption bemerkbar macht. Gleichzeitig wird die spektrale Verteilung des kontinuierlichen Spektrums immer steiler. Die Ver-e-fachungslänge  $A_-$  ist unter gewissen vereinfachenden Voraussetzungen durch

$$A_- = \frac{1}{N_2 \sigma_2} = \frac{32 \pi^2 h c}{\lambda_0^3} \frac{\Delta \nu}{W_{21}}$$

gegeben, wo  $\lambda_0$  die Wellenlänge des Maximums des molekularen Kontinuums und  $W_{21}$  die pro  $\text{cm}^3$  und sec. emittierte Strahlungsleistung des Plasmas ist.

Eine etwas ausführlichere Darstellung dieses Gedankens erscheint demnächst in dem, dem Andenken an WOLFGANG PAULI gewidmeten Heft der *Helvetica Physica Acta*.

#### *Literatur*

- <sup>1)</sup> J. PLÜCKER und J. W. HITTORF, *Phil. Trans. roy. soc.*, London **155**, 22 (1865).
- <sup>2)</sup> J. G. WINAUS und STUECKELBERG, *Proc. nat. Acad. Amer.* **14**, 867 (1928).

### **Eléments de compensation d'un stabilisateur de tension continue réglable**

par R. L. FAVRE

(Laboratoire de Recherches Nucléaires, Lausanne)

Il peut être avantageux d'asservir partiellement la réponse d'un stabilisateur de tension à des éléments de compensation plutôt qu'à un amplificateur de gain très élevé. Dans cet ordre d'idées, il est bien connu que la résistance interne d'un stabilisateur électronique de tension continue peut être réduite jusqu'à s'annuler localement par la contre-réaction en courant d'une résistance de compensation  $R_i$  (fig. 1) tandis que les variations de tension non stabilisée sont, en principe, compensables par une résistance  $R_e$ .

La chute de tension non stabilisée due à un accroissement de la charge se distingue de celle qui résulterait d'une chute de tension du secteur en ce que la première n'affecte pas le chauffage des tubes. Cette différence implique l'autocompensation des variations de tension de chauffage, ce qui peut être obtenu par une adaptation des paramètres de l'amplificateur différentiel ou la stabilisation du courant de chauffage (tube balast ou autre).



Les artifices de compensation usuels, appliqués à la figure 1, ne s'adaptent pas à une tension de sortie réglable ou à un stabilisateur multiple (comportant plusieurs tensions de sortie indépendantes mais de masse

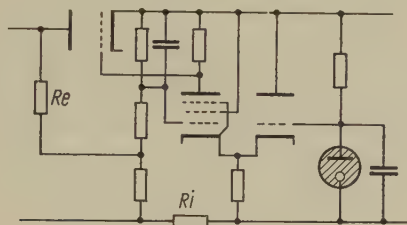


Fig. 1

commune). Cette lacune nous a incité à développer le schéma de la figure 2 dont les éléments de compensation, d'une grande efficacité, échappent aux restrictions précédentes.

Le gain de l'amplificateur différentiel est maintenu à une valeur élevée jusqu'aux confins du domaine d'utilisation par la charge anodique de

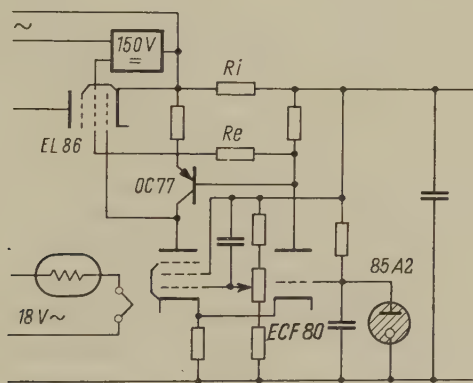


Fig. 2

haute impédance dynamique que constitue le transistor sur lequel agissent les éléments de compensation  $R_i$  et  $R_e$ . La polarisation de base et la résistance d'émetteur définissent le courant moyen de la pentode amplificatrice que nous avons choisi voisin de 0,5 mA. Ces grandeurs interviennent également pour limiter le courant de court-circuit à une valeur peu supérieure au courant utile maximum, grâce à l'emploi d'un tube rhéostat à écran dont l'alimentation est autonome. La résistance d'émetteur réduit d'autre part la dérive thermique du transistor.

La courbure des caractéristiques du tube rhéostat est compensée de manière très satisfaisante en constituant la résistance  $R_i$  par un élément de redresseur au sélénium, orienté dans le sens direct. La résistance interne du stabilisateur n'excède par  $10^{-2}$  ohms pour tout le domaine de tensions et courants utiles (160–500 V, 0–100 mA).

Nous remercions M. le professeur HAENNY, notre technicien M. QUINCHE et la Commission Suisse pour la Science Atomique de leur précieuse contribution respective à ce travail.

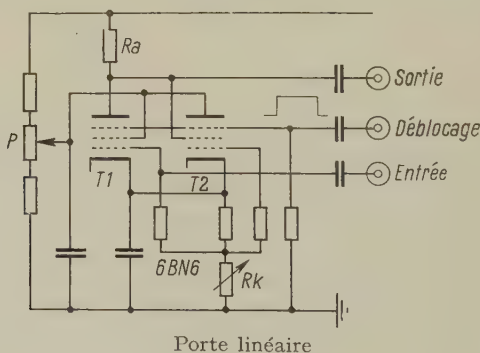
### Circuit « porte » linéaire

par R. L. FAVRE

(Laboratoire de Recherches Nucléaire, Lausanne)

Les circuits « porte », appliqués en technique nucléaire notamment, ont pour fonction de ne laisser passer que des signaux présélectionnés. Cette condition ne pose pas de problème tant que la linéarité de transmission n'est pas requise (emploi d'un tube à deux grilles de commande par exemple). Dans le cas contraire, l'impulsion d'ouverture de la porte ne doit, par elle-même, donner lieu à aucun signal de sortie gênant, en dépit du déblocage d'éléments polarisés dans la région de conduction linéaire. Les difficultés inhérentes aux méthodes en usage nous incitent à signaler la solution que nous avons apportée à ce problème.

Un tube à deux grilles de commande ne satisfait pas, à lui seul, aux conditions requises. En effet: si la grille d'entrée est polarisée dans la région linéaire des caractéristiques, le déblocage de l'autre engendre une impulsion de sortie parasite à laquelle se superposerait le signal à transmettre. Nous avons tourné la difficulté en utilisant le fait que la somme des courants anodique et d'écran d'un tube à deux grilles de commande



est pratiquement indépendante du potentiel de la seconde. C'est ainsi que la tension de sortie du circuit ci-dessous n'est pas affectée par l'impulsion de déblocage appliquée sur les secondes grilles de commande, abstraction faite d'une légère perturbation pouvant résulter des capacités parasites. Une dissymétrie des tubes est d'ailleurs compensable par le réglage du potentiomètre  $P$ .

Le pouvoir de commande de la seconde grille d'un tube 6BN6 disparaît pratiquement lorsque sa tension dépasse celle de cathode. L'amplitude des impulsions de déblocage n'est de ce fait pas critique au-delà de cette valeur, d'ailleurs ajustable dans une certaine mesure par la résistance cathodique  $Rk$ . La tension de déblocage minimum est de l'ordre de 3 à 4 V.

Le circuit est sans autre applicable aux techniques rapides. Le temps de transit des électrons de la première à la seconde grille étant de l'ordre de 2 ns, on devra, au besoin, différer d'autant le déblocage. Une impulsion d'ouverture à fronts très raides se manifeste à la sortie par une perturbation capacitive qui demeure toutefois sans effet dans les nombreux cas où la linéarité ne porte que sur l'amplitude et non sur la forme des impulsions à transmettre. Un système de neutrodynage pourrait encore être envisagé pour remédier à cet état de choses.

Nous remercions M. le professeur HAENNY, notre technicien M. BAICHE et la Commission Suisse pour la Science Atomique de leur précieuse contribution respective à ce travail.

## Modifications et performances d'un compteur d'impulsions UHF

par R. L. FAVRE

(Laboratoire de Recherches Nucléaires, Lausanne)

Le principe de l'étagé binaire communiqué lors de la précédente session de la SSP<sup>1)</sup> repose sur une complète séparation des fonctions «dynamique» et «statique», de manière à permettre la seconde même pour les faibles excursions de tension requises en technique rapide. La dynamique des permutations est assurée par des tubes électroniques à facteur de mérite élevé (E88CC) tandis que le couplage continu est confié à un étagé binaire transistorisé.

L'étude de ce circuit a fait l'objet du travail de diplôme de M. J. BUTTET.

Les impulsions d'entrée négatives étaient appliquées aux anodes par l'intermédiaire de diodes appropriées. La durée des impulsions, issues d'un générateur à relais mécanique, est ajustable par la longueur du câble de mise en forme. Leur temps de montée est inférieur à 1 ns.

Les performances suivantes ont été enregistrées:

Durée requise des impulsions d'entrée: 3 à 4 ns.

Amplitude des impulsions d'entrée: 4 à 5 V.

Temps de résolution relatif à deux impulsions successives: env. 9 ns.

La reprise récente de cette étude devait apporter de substantielles améliorations à ces résultats.

### *Contribution de la réponse transitoire des diodes de commutation*

Le temps d'établissement du courant dans une diode polarisée par une tension directe correspond partiellement à un élément inductif de son schéma équivalent. Cette propriété est utilisable en attaquant le circuit par des impulsions positives, appliquées directement aux diodes limiteuses de grilles (fig. 1).

En admettant l'état de blocage initial du tube *T1*, sa diode de grille est le siège d'un courant de repos qui lui assure une réponse très rapide

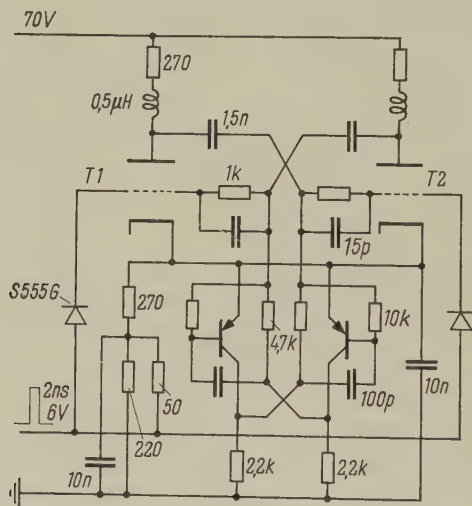


Fig. 1

Tube E 88CC, transistors OC44

à la première impulsion d'entrée. L'établissement du courant dans l'autre diode, alors polarisée dans le sens direct, est par contre suffisamment retardé pour ne pas compromettre la permutation des états de conduction. La rapide adaptation des diodes à ces nouvelles conditions de polarisation autorise dès lors une seconde permutation par la simple prolongation de l'impulsion d'entrée, phénomène qui ouvre la voie à une importante réduction du temps de résolution.

L'expérience s'accorde avec une théorie élémentaire pour démontrer que les diodes d'attaque les plus rapides ne conduisent pas nécessairement aux conditions optimum. C'est ainsi que les diodes «Transistron» S555G (temps de recouvrement max. 6 ns) donnent de meilleurs résultats que les diodes S570G (temps de recouvrement max. 2 ns).

La courbe 1 de la figure 2 situe le seuil d'amplitude d'une impulsion, en fonction de sa durée, pour obtenir une permutation simple tandis que

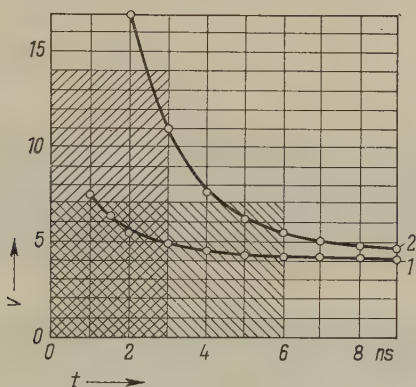


Fig. 2

Courbe 1: seuil de permutation simple

Courbe 2: seuil de double permutation

la courbe 2 donne le seuil relatif à une double permutation. Il résulte de ces graphiques que les caractéristiques d'impulsions les plus rationnelles se situent vers une durée de 3 ns et une amplitude de 7 V (zone doublement hachurée). Les tolérances sont alors remarquablement élevées.

### *Temps de résolution relatif à deux impulsions successives*

On examinera deux cas:

- a) Le processus de formation des impulsions permet le cumul des amplitudes ou des durées (zone hachurée montante, respectivement descendante):

Le temps de résolution relatif à deux impulsions successives est alors strictement nul. La stabilité des doubles permutations est très grande comme l'atteste le fait qu'il ne nous a pas été possible d'obtenir une triple permutation par l'augmentation de l'amplitude, même avec des impulsions de 10 ns. Le circuit doit en quelque sorte être «réarmé» par un intervalle «creux» pour admettre une troisième impulsion.



- b) Le processus de formation des impulsions est tel qu'une seconde impulsion se substitue à la première:

Si l'on admet les mêmes caractéristiques que ci-dessus, on voit que la première impulsion (zone doublement hachurée) doit être prolongée d'environ  $1,5 \text{ ns}$  pour donner lieu à une double permutation. Cette valeur constitue le temps de résolution relatif à deux impulsions successives correspondant à de telles conditions. Il peut être réduit, au détriment de la stabilité, par un élargissement des impulsions.

La figure 3 reproduit quelques oscillogrammes typiques, obtenus au moyen d'un oscilloscope Tektronix 581 de temps de montée égal à  $3,5 \text{ ns}$

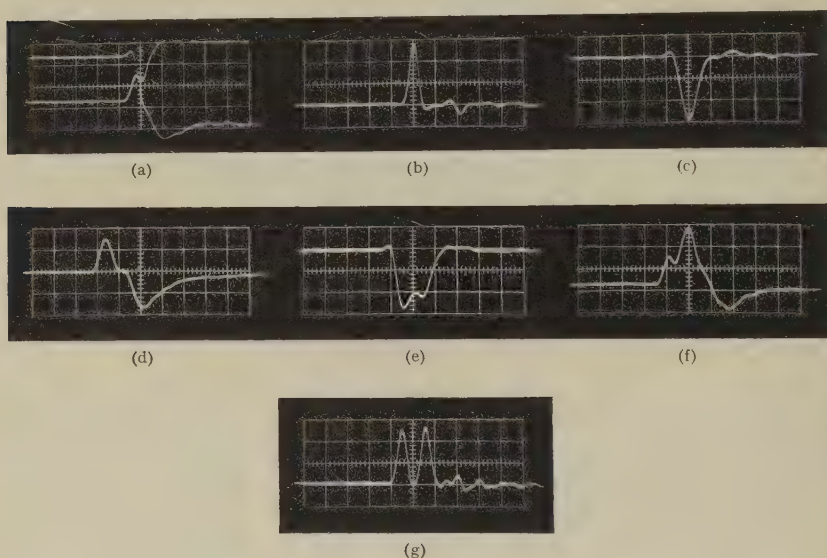


Fig. 3

(valeur notablement insuffisante pour cette étude, le temps de montée des impulsions étant inférieur à la nanoseconde). La vitesse de balayage est uniformément de  $10 \text{ ns}$  par carré et l'amplitude de  $2 \text{ V}$  par carré.

L'oscillogramme 3a donne la réponse anodique à l'impulsion 3b, d'une durée de  $2 \text{ ns}$  (élargie par l'amplificateur de l'oscilloscope). Les deux courbes de ce graphique correspondent aux deux types de permutations alternées. L'excursion de tension apparemment plus grande sur la droite de l'oscillogramme que sur la gauche est due à la différenciation de l'oscilloscope, la fréquence de répétition étant relativement basse ( $100 \text{ Hz}$ ).

Les oscillogrammes 3c et 3d donnent la réponse respective de chacune des anodes à deux impulsions de  $2 \text{ ns}$ , distantes de  $3 \text{ ns}$ .

Les oscillogrammes 3e et 3f donnent la réponse respective de chacune des anodes à deux impulsions de 2 ns, distantes de 10 ns (oscillogramme 3g).

*Conclusions.* Le temps de résolution nul, sinon voisin de la nanoseconde, relatif à deux impulsions successives, ne manquera pas de trouver des applications en techniques nucléaires. La fréquence de répétition maximum n'a pas encore été déterminée, mais on peut conclure des oscillogrammes qu'elle est voisine de 100 MHz. Une étude du comportement des diodes de commutation, que nous pensons poursuivre au moyen d'un oscilloscope stroboscopique, permettra, espérons-nous, d'améliorer ces performances.

La tension d'alimentation, de l'ordre de 70 V, admet, comme les impulsions d'entrée, une tolérance élevée. Un courant anodique voisin de 20 mA détermine une dissipation totale inférieure à 1,5 W.

L'affichage par tubes Philips DM 160 est des mieux adaptés.

Il nous reste à résoudre le problème du couplage des étages, pour lequel la solution préconisée dans notre précédente communication 2) pourrait entrer en considération.

Nous remercions M. le professeur HAENNY, M. BUTTET, notre technicien M. BAICHE et la Commission Suisse pour la Science Atomique de leur précieuse contribution respective à ce travail.

#### *Bibliographie*

- 1) R. FAVRE, Compteur d'impulsions pour le domaine des UHF. *Helv. Phys. Acta* 32, 502-504 (1959).
- 2) R. FAVRE, Procédé de couplage d'étages compteurs transistorisés. *Helv. Phys. Acta* 32, 499-500 (1959).

## **The Sign of Absolute Temperature $T$ in Phenomenological Thermodynamics**

by E. C. G. STUECKELBERG\*)

(Universities of Geneva and Lausanne)

(1) *Negative  $T$ 's* have been introduced in *Thermo-Statistics* by RAMSEY<sup>1)</sup>: Let  $Z(\tau) = \sum_i \exp(\tau H_i / k^{-1})$  be the sum over states, and call  $\tau = -T^{-1}$  the *natural temperature scale* ( $-\infty < \tau < +\infty$ ). If  $Z$  converges for  $\tau \lesssim 0$ , positive and negative  $T$ 's are possible. The energy  $\langle H \rangle$  and the *positive heat capacity*  $C'$  (with respect to the  $\tau$ -scale) are given by

$$\langle H \rangle = k \partial_\tau \log Z; \quad C' = \partial_\tau \langle H \rangle = k^{-1} \langle \Delta H^2 \rangle \geq 0 \quad (1.1)$$

---

\*) Supported by the Swiss National Research Fund.

where  $\langle \Delta H^2 \rangle = \langle H^2 \rangle - \langle H \rangle^2 \geq 0$  is the energy fluctuation in the macro-canonical ensemble. The entropy

$$S = k (\log Z - \tau \partial_\tau \log Z); \quad \partial_\tau S = -\tau C' \quad (1.2)$$

has a maximum for  $\tau = 0$ .

(2) In *phenomenological thermodynamics*, we consider the following model: The system  $\Sigma$  is made up of  $\Omega$  system elements  $\Sigma^A$  ( $AB \dots = 12 \dots \Omega$ ). Entropy  $S = \Sigma S^A$  and energy  $H = \Sigma H^A$  are extensive quantities. The energy of a system element (damped oscillator) depends on  $S^A$  and on one (or several) geometrical coordinates  $r^A$  and their velocities  $\dot{r}^A = v^A$ .

(3) *Evolution*. At first, let us suppose, that each  $\Sigma^A$  is adiabatically closed. The *first law*  $\delta H^A = \delta A^A = K^{(\text{inc})A} \delta r^A$  has the form

$$\dot{H}^A = H_{,SA}^A \dot{S}^A + H_{,rA}^A \dot{r}^A + H_{,vA}^A \dot{v}^A = P_{(A)}^A = K^{(\text{inc})A}(t) \dot{r}^A. \quad (3.1)^*$$

Defining *temperature*, *elastic force* and *mass* by

$$H_{,SA}^A \equiv T^A = -(\tau^A)^{-1}; \quad H_{,rA}^A \equiv -K^{(\text{el})A} = a^A (r^A - r_0^A); \quad H_{,vA}^A \equiv M^A v^A \quad (3.1a)$$

the *second law* states

$$\dot{S}^A = \tau^A (M \dot{v} - (K^{(\text{el})} + K^{(\text{inc})})^A v^A) \geq 0 \quad (3.2)$$

this condition is fulfilled, if

$$M^A \dot{v}^A = (K^{(\text{el})} + K^{(\text{inc})} + K^{(\text{fr})})^A; \quad K^{(\text{fr})A} = -\lambda^A v^A; \quad -\tau^A \lambda^A \geq 0. \quad (3.3)$$

$K^{(\text{fr})A}$  is the force of friction: *The coefficient of friction  $\lambda^A$  has the sign of  $T^A$* . Now, let us admit *heat exchange* between the  $\Sigma^A$ 's, but suppose  $\Sigma$  adiabatically closed: the first law states  $\delta H^A = \delta A^A + \delta Q^A$ , or

$$\dot{H}^A = H_{,SA}^A \dot{S}^A + \dots = P_{(A)}^A + P_{(Q)}^A; \quad P_{(Q)}^A = \sum_B P_{(Q)}^{[AB]}; \quad (3.4)**$$

The second law requires

$$\dot{S} = \sum_A \dot{S}^A = \sum_A (-\tau^A \lambda^A (v^A)^2) + \frac{1}{2} \sum_A \sum_B P_{(Q)}^{[AB]} (\tau^B - \tau^A) \geq 0 \quad (3.5)$$

condition, which is satisfied if

$$\delta Q^{[AB]}/\delta t = P_{(Q)}^{[AB]} = \kappa'^{(AB)} (\tau^B - \tau^A); \quad \kappa'^{(AB)} \geq 0. \quad (3.6)**$$

\*) The indices (A) and (Q) in (3.1), (3.4) etc. stand for *power* P, due to *work* (Arbeit) and to *heat* (Quantität der Wärme). Thus, they have no relation to the upper indices A.

\*\*) We denote antisymmetric quantities by  $P_{(Q)}^{[AB]} = -P_{(Q)}^{[BA]}$  and symmetric quantities by  $\kappa'^{(AB)} = \kappa'^{(BA)}$ .

Thus, positive heat flows from  $\Sigma^B$  to  $\Sigma^A$  if  $\tau^B > \tau^A$ , and our natural scale measures temperature: *Negative  $T$ 's are hotter than positive  $T$ 's.*

(4) A further condition is, that for  $K^{(\text{inc})A}$  independent of time  $t$ , the system approaches, for  $\lim t = +\infty$ , a *state of equilibrium*, defined by

$$S = \text{maximum}; \quad \widehat{H} = \sum_A \widehat{H}^A \equiv \sum_A (H^A - K^{(\text{inc})A} v^A) = \widehat{H}' \quad (4.1)$$

where  $\widehat{H}'$  is a constant. The extremum conditions for  $S = S(S^1 S^2 \dots S^{\Omega-1} v^1 \dots v^{\Omega-1})$  are:

$$\begin{aligned} S_{,SA} &= 1 - T^A/T = 0; \quad S_{,v^A} = -\tau^A (K^{(\text{el})} + K^{(\text{inc})})^A = 0 \\ S_{,v^A} &= \tau^A M^A v^A = 0 \end{aligned} \quad (4.2)$$

i. e. *constant temperature, equilibrium of forces and velocities = 0*. The minimum condition  $-\delta^{(2)} S > 0$  is

$$-S_{,SA} S^A = -\tau (T_{,SA}^A + T_{,S\Omega}^{\Omega}) > 0 \quad (4.3)$$

$$-S_{,v^A} v^A = -\tau \widehat{H}_{,v^A} v^A = -\tau a^A > 0 \quad (4.4)$$

$$-S_{,v^A} v^A = -\tau \widehat{H}_{,v^A} v^A = -\tau M^A > 0 \quad (4.5)$$

Condition (4.3) requires that  $T^A S_{,TA} = T^A (T_{,SA}^A)^{-1} = C^A$ , the *heat capacity* (in the  $T$  scale), is *always positive*. ( $C^A = \tau^{-2} C^A$  is also positive). (4.4) and (4.5) state that the *energy is a minimum (maximum) for positive (negative)  $T$ 's*.

Mass (4.5), elastic constant (4.4) and coefficient of friction (3.3) have all the sign of  $T$ . Thus, we have in both cases damped oscillations, and, as  $C^A$  and  $\kappa^{(AB)}$  are both positive, an exponential approach to equilibrium temperature. Also the second equation (1.2)

$$\partial_\tau S^A = -\tau C'^A, \text{ follows: i.e. } S^A \text{ is a maximum for } \tau^A = 0. \quad (1.2)$$

If we take mass as an always positive quantity,  $T$  must be positive. Negative  $T$ 's can only appear in very special systems, where no kinetic energy of the type  $1/2 M^A (v^A)^2$  appears.

(5) We have applied this method to the *non relativistic theory of fluids*. The *first law* is a set of homogenous continuity equations for the *densities*  $h$ ,  $\pi_i$  and  $\mu_{[ik]}$  of *energy*, *momentum* and *angular momentum*. The *second law* is an inhomogenous continuity equation for  $s$ , the *entropy density*, with a *positive definit source*  $i \geq 0$  (*density of inversibility*). Galilei invariance furnishes a further homogenous continuity equation for the *mass density*  $m$  in  $\pi(\mathbf{x}) = m(\mathbf{x}) \mathbf{v}(\mathbf{x})$ . Evolution requires: The coefficient of heat conduction  $\kappa(\mathbf{x}) \geq 0$ , and for the transversal and longitudinal viscosities:

$$-\tau(\mathbf{x}) \eta(\mathbf{x}) \geq 0; \quad -\tau(\mathbf{x}) (\xi + (2/3)\eta)(\mathbf{x}) \geq 0 \quad (5.1)$$

*Equilibrium requires:* ( $h = 1/2 m v^2 + u(s m)$ )

$$- \tau(x) m(x) > 0; \quad - \tau(x) (u_{,ss} s^2 + 2 u_{,sm} + u_{,mm} m^2)(x) \\ = - \tau(x) V \left( \frac{\partial p}{\partial V} \right)_{S, M = \text{const}} > 0.$$

i. e. mass density, elastic modulus and viscosity ( $2\eta + \xi$ ) (for longitudinal waves) have the sign of  $T(x)$ . Heat capacity per unit volume is  $c(x) > 0$ . Thus, if mass density is always positive,  $T$  is positive.

An interesting remark should be added: Heat conduction and damped waves admit only solutions for the future. Thus, the physicist can provide initial conditions in order to change the future. The psychiatrist may be defined as the man, who is able to change the past<sup>2)</sup>. Their relation is the same as between the greek demigods Prometheus and Epimetheus<sup>2)</sup>.

(6) In relativistic theory of fluids (see <sup>4)</sup>), no homogenous continuity equation for  $m(x)^*$  results from  $\partial_\alpha \theta^{(\alpha\beta)}(x) = 0$ . Restmass — and restentropy — density are related by  $m(x) = T(x) s(x)$ .  $m$  has the sign of  $T$ .

Thus  $s(x) > 0$  follows, which may be considered as a rudimentary form of the third law. If a continuity equation for density of substance  $n(x)$  is postulated, we have  $m = Ts + \mu n$  where  $\mu$  is the chemical potential.

#### References

- <sup>1)</sup> N. F. RAMSEY, Phys. Rev. 103, 20 (1956).
- <sup>2)</sup> This second remark is due to the psychiatrist H. K. FIERZ (the twin brother of the physicist M. FIERZ).
- <sup>3)</sup> CARL SPITTELER, Prometheus und Epimetheus, . . .
- <sup>4)</sup> E. C. G. STUECKELBERG and G. WANDERS, Helv. Phys. Acta 26, 307 (1953).

\*)  $x = \{x^\alpha\} = \{x, x^4 = t\}$ .

#### Photomultiplier mit Sb-Na-K-Kathode

VON W. BAUMGARTNER UND J. LINDER, Zürich

Durch Sommer<sup>1)</sup> ist ein neuer Photokathodentyp bekannt geworden, der sich aus der Kombination von Antimon mit zwei oder mehreren Alkalimetallen aufbaut. Diese Schichten haben teilweise bemerkenswerte Eigenschaften. Aus bisher bekannt gewordenen Ergebnissen ist ersichtlich<sup>2)</sup>, dass die Kombination Sb-Na-K-Cs sich durch grosse Empfindlichkeit, ausgedrückt in  $\mu\text{A/L}$ , auszeichnet. Aber bereits eine Schicht der Art Sb-Na-K ist interessant, da sie bei geeigneter Formierung für UV-Licht relativ hohe Quantenausbeuten  $\eta$  (%), bezogen auf auffallendes Licht, aufweist. Ferner ist von vornherein zu vermuten, dass eine Kathode



ohne Cs niedrigeren Dunkelstrom aufweisen wird als eine solche mit Cs. Deswegen haben wir die Herstellung von Sb-Na-K-Schichten und ihre Eigenschaften in Kombination mit 12stufigen Multipliern mit Cu-Be-Dynoden (Verstärkung ca.  $2\text{--}8 \cdot 10^6$  bei 200 V pro Stufe) studiert.

Über die bisherigen Resultate soll hier kurz referiert werden.

### *Präparation*

Die Präparation dieser Schichten ist, verglichen mit Sb-Cs-Kathoden, erheblich komplizierter und heikler, vor allem im Hinblick auf die Vermeidung von Alkali-Überschuss, der nur schwer ohne Beeinträchtigung der Photoempfindlichkeit zu eliminieren ist. Sie umfasst zunächst die Herstellung einer Sb-Na-Schicht, anschliessend einer solchen der Zusammensetzung Sb-K, alles bei Temperaturen von  $90\text{--}110^\circ\text{C}$ . Als Dickenmass der einzelnen Schichten dient die Lichtdurchlässigkeit der aufgedampften Sb-Beläge. (90% für Sb-Na, 80% für Sb-K)<sup>3)</sup>.

### *Spektrale Empfindlichkeit*

In Figur 1 ist nach Messungen an Zellen und Photomultipliern mit Glas und Quarzfenstern, die Quantenausbeute der Schichten in Funktion der Wellenlänge  $\lambda(\text{\AA})$  angegeben. Maximal wurden für das Gebiet bei

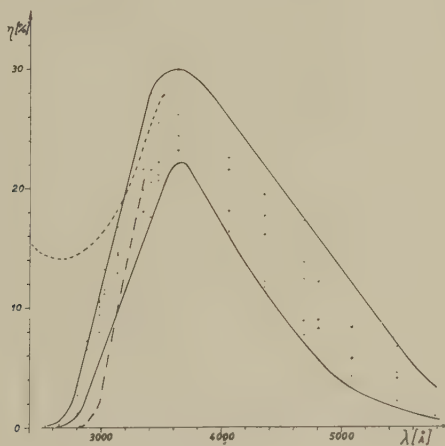


Fig. 1

$3600\text{ \AA}$  ca. 30% erreicht. Dem in der Figur angedeuteten Streubereich entsprechen, mit  $W$ -Lampe gemessen, Empfindlichkeiten von ca. 10 bis  $25\text{ }\mu\text{A/L}$ . Diese Angabe ist wesentlich durch die Verhältnisse für Licht in Nähe der Grenzwellenlänge bestimmt, und für die Eigenschaften der Schicht im Wellenlängengebiet  $\leq 5000\text{ \AA}$  nicht eindeutig kennzeichnend.

*Dunkelstrom*

Den Erwartungen entsprechende Resultate ergaben sich für die Grösse des Dunkelstromes. Für den Anodenstrom eines Photomultipliers mit  $2 \cdot 10^6$  Verstärkung, wurden Werte der Grössenordnung  $\leq 1 \cdot 10^{-10}$  A gefunden. Das ist vergleichbar mit den früher bei Sb-Li-Schichten erhaltenen Ergebnissen<sup>4)</sup>.

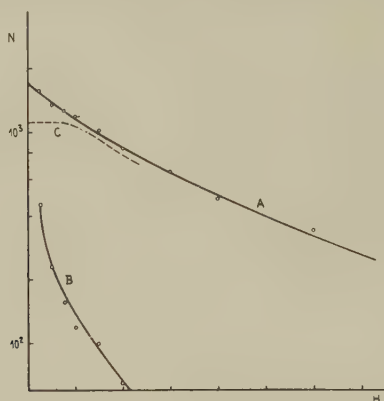


Fig. 2

Der angeführte Wert ergibt bei  $20 \text{ cm}^2$  Kathodenfläche ca. 15 Elektronen/ $\text{cm}^2 \text{ sec.}$  als Dunkelemission, das heisst 2–3 Zehnerpotenzen weniger als bei Sb-Cs. Die entsprechend niedrigen Impulszahlen lassen leicht eine Analyse mit Diskriminator und Zähler zu.

In Figur 2 ist auf der Ordinate die Anzahl der Impulse/sec. (N), die eine bestimmte Höhe überschreiten, auf der Abszisse die Impulshöhe (H)

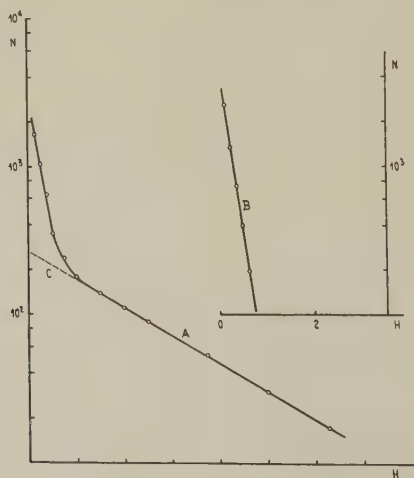


Fig. 3

angegeben. Kurve A gilt für normale Verteilung der einzelnen Spannungen auf Kathode und Dynoden, B für den Fall, dass die Kathode auf dem Potential der Dynode 1 liegt. Durch Subtraktion der Werte von B von denjenigen von A folgt die mit deutlichem Plateau versehene Kurve C. Ihr auf Impulshöhe 0 extrapolierte Verlauf ergibt die Nullstosszahl von 110/sec. oder  $\sim 5 \text{ cm}^2/\text{sec.}$

In Figur 3 ist ein weiterer typischer Fall angegeben, der besonders viele aus dem Multipliersystem stammende Dunkelstösse zeigt. A ist wieder die Kurve mit arbeitender, B mit unwirksamer Kathode. Die angedeutete Extrapolation des flacheren, auf die eigentlichen Kathodendunkелеlektronen zurückzuführenden Kurvenstücks von A bis Impulshöhe 0 gibt eine Impulszahl von 300/sec., das heisst 15 Elektronen/cm<sup>2</sup>sec. der Kathodenoberfläche.

#### *Literatur*

- 1) A. H. SOMMER, Rev. Sci. Instr., 26, 725 (1955).
- 2) R. W. ENGSTROM *et al.*, IRE Transactions NS 5, 120 (1958).
- 3) Ein Zusammenhang mit den Ergebnissen von J. J. SCHEER und P. ZAHN, Phil. Res. Rep. 14, 143 (1959) haben wir bis jetzt nicht gefunden.
- 4) N. SCHAEFFI und W. BAUMGARTNER, Le vide, 1041 (1951).

### **Schalen gleicher Festigkeit**

von W. ISSLER, Zürich\*)

Die Definition der gleichen Festigkeit und das Beispiel der sphärischen Kuppel wurde neulich in einer kurzen Mitteilung<sup>1)</sup> dargestellt.

Für eine gegebene Belastung lässt sich jedoch nicht jede Fläche als Schale gleicher Festigkeit ausbilden. So gelingt dies zum Beispiel bei den Rotationsflächen zweiter Ordnung (Belastung: Eigengewicht) nur für eine gewisse Schar von Ellipsoiden.

#### *Literatur*

- 1) W. ISSLER, Eine Kuppel gleicher Festigkeit, ZAMP 10, Fasc. 6 (1959).

---

\*) Assistenz für Mechanik an der ETH.

## Transistorisierte Zeemanmodulation für Kernquadrupolresonanzen

von P. KESSELRING

(Laboratorium für Festkörperphysik ETH, Zürich)

Die Signale der Kernquadrupolresonanz sind von der Grössenordnung des thermischen Rauschens. Man versucht sie deshalb zu modulieren (Modulationsfrequenz  $\nu$ ) und das dabei entstehende Signal der Frequenz  $\nu$  selektiv zu verstärken. Es gibt zwei verschiedene Modulationsverfahren: Frequenzmodulation (FM) und Zeemanmodulation (ZM). Die ZM hat gegenüber der FM den Vorteil grösserer Stabilität und der Unempfindlichkeit gegen Störsignale.

Die ZM beruht auf folgendem Prinzip: Bringt man die Probe in ein inhomogenes Magnetfeld, so wird das Signal durch Zeemaneffekt so stark

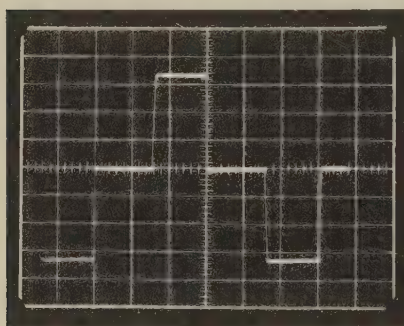


Fig. 1

Strom durch die Magnetspule

Höhe der Stromimpulse	3,4 Amp
Dauer der Stromimpulse	8 msec
Impulsanstieg	0,3 msec
Impulsabfall	0,2 msec
Zeitkonstante der Spule	30 msec

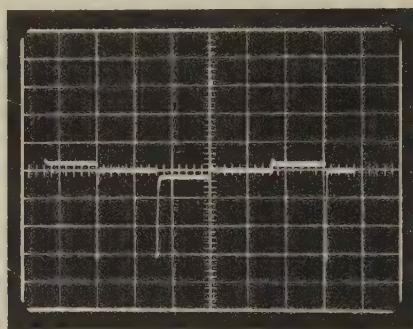


Fig. 2

Spannung über der Magnetspule

Höhe der Spannungsspitzen	32 Volt:
+	nach unten
-	nach oben

verschmiert, dass es praktisch vollständig verschwindet. Ein Magnetfeld der Form  $H(t)$  gemäss Figur 4, in der Literatur\*) antisymmetrisch genannt, liefert deshalb ein Signal der Frequenz  $\nu$ .  $H(t)$  selbst enthält nur die Frequenzen  $\nu/2, 3\nu/2, \dots$ , nicht aber  $\nu$ . Die Frequenz  $\nu$  tritt darum in der Detektorspule als induzierte Spannung nicht auf (kein «Pick-up»).

Wir stellen folgende Forderungen an die ZM:  $H \approx 100$  Gauss, resp.  $H = 0$  (Restfeld  $\leq$  Erdfeld); steile Flanken; gute Symmetrie; Ampli-

\*) F. REIF and E. M. PURCELL, Phys. Rev. 97, 631 (1953).

tudenkonstanz über längere Zeit  $\approx 10\%$ . Als günstiger Wert für  $\nu$  hat sich 66 Hz erwiesen.

Zur Lösung des Problems verwenden wir eine Transistorschaltung, die gegenüber Röhren und Relaischaltungen wesentliche Vorteile bietet: Kleine Induktionsspitzen und daher keine Isolations- und Funkenlösch-

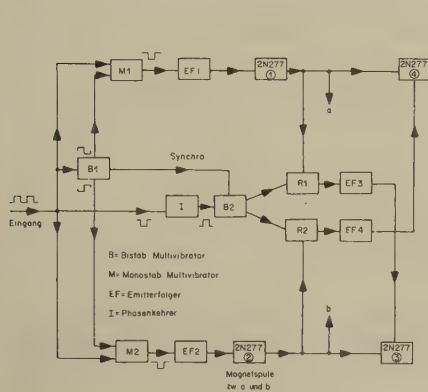


Fig. 3

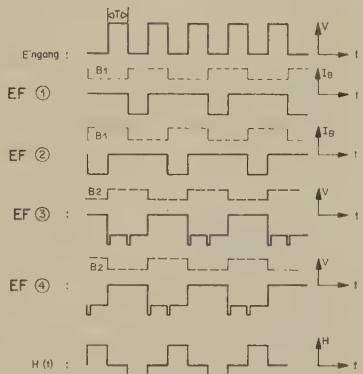


Fig. 4

probleme, kein Ausgangstrafo. Die Ströme dagegen werden relativ gross. Die Schaltung arbeitet wie folgt: Wir öffnen die Transistoren (im folgenden mit «T» abgekürzt) 1 und 3 (siehe Fig. 5). Der Strom durchfließt die Spule von a nach b. Sind hingegen T2 und T4 offen, fließt er von b

Zeemanmodulation

**R2, EF4 und Leistungstransistoren**

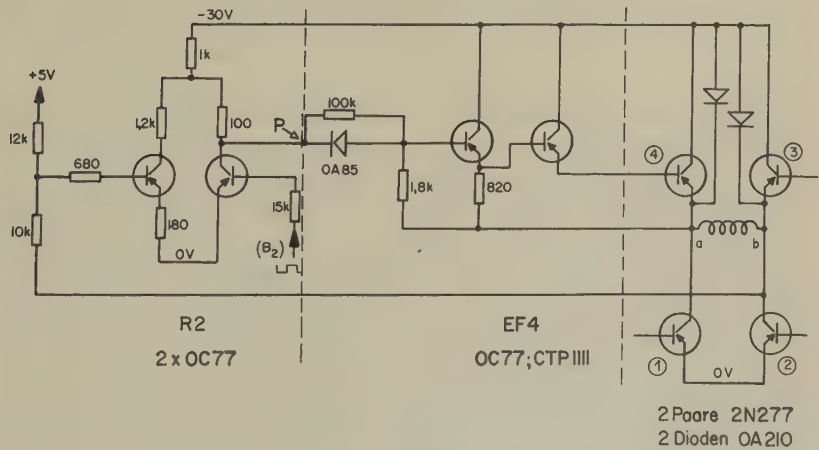


Fig. 5



nach  $a$ . Die beiden Dioden 0A210 begrenzen die Induktionsspitzen auf 30 Volt.

Figur 4 zeigt die benötigten Steuerwellenformen an den Eingängen der Emitterfolger EF 1 bis EF4. Wie sie erzeugt werden, zeigt das Blockschema Figur 3 sowie Figur 4: Der bistabile Multivibrator B1 wird durch die abfallenden, B2 durch die ansteigenden Flanken der Eingangsrechtecke gekippt (Fig. 4). Mit dem Anstieg von B1 wird der monostabile Multivibrator M1 resp. M2 getriggert. Die Zeitkonstante von M1 und M2 ist  $> T$ . Es ist deshalb möglich, M1 resp. M2 nach der Zeit  $T$  durch die Anstiegsflanke der Eingangsspannung in den stabilen Zustand zurückzukippen. M1 resp. M2 liefert einen rechteckigen Basisstromimpuls an EF1 resp. EF2.

Die Ausgangsspannung des Netzwerkes R1 resp. R2 wird einerseits von B2, anderseits von der Spannung im Punkte  $a$  resp.  $b$  bestimmt. Details siehe Figur 5.

Die Magnetspule besteht aus zwei parallel geschalteten Spulen mit je 300 Windungen Cu-Draht von  $1 \text{ mm}^2$  Querschnitt. Widerstand pro Spule = 1 Ohm. Maximalstrom = 7 Amp. Figur 1 zeigt die ZM-Wellenform, Figur 2 den dazugehörigen Spannungsverlauf an der Spule.

Die Apparatur ist seit einem halben Jahr ständig in Betrieb und hat sich während dieser Zeit sehr gut bewährt.

(Diese Arbeit wurde aus Mitteln der Arbeitsbeschaffungskredite des Bundes unterstützt.)

### **Ein überlastbarer Verstärker für hohe Impulsfrequenzen**

von W. BEUSCH und R. MÜLLER

(Physikalisches Institut der ETH, Zürich)

Bei der Impulsspektrometrie stellt sich das Problem, dass Impulse sehr verschiedener Grösse durch einen Verstärker wiedergegeben werden sollen, ohne dass ein Impuls durch die vorhergegangenen beeinflusst wird. Doppelttes Clipping durch Laufzeitkabel verkürzt die Dauer der Signale und liefert eine Pulsform ohne niederfrequente Komponenten<sup>1) 2)</sup>. Diese Anordnung wird hier verwendet. Weiter enthält der Verstärker eine scharf einsetzende Begrenzung und eine Kompensationsschaltung, welche dem Ausgangsimpuls ein flaches Maximum gibt, auch wenn die Zerfallszeitkonstante des Eingangsimpulses relativ kurz ist (ca.  $10 \mu\text{s}$ ).

Der Verstärker zeigt bei beliebig hohen Impulsfrequenzen ( $> 2 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$ ) keine anderen unerwünschten Effekte als die statistisch zu erwartenden Überlagerungen. Von einer 20fachen Übersteuerung erholt er sich inner-



Wesentlich ist dabei, besonders im Falle der Übersteuerung, dass das Unterschwingen nach dem ersten Clipping (Kabel an der Anode von  $T_1$ ) kompensiert wird. Durch die Aufladung von  $C_1$  während des Impulses befindet sich das rechte Gitter von  $T_2$  nach dem Impuls exakt auf der Ruhelage. Die Diode  $D_2$  am Kathodenfolger  $T_6$  links hält die Kathode bei Übersteuerung fest. Ihr Widerstand in Sperrrichtung ist gegen die Kathodenfolger-Impedanz zu vernachlässigen; umgekehrt ist ihr Widerstand in Leitrichtung gegen die Impedanz des stromlosen Kathodenfolgers sehr klein. Daraus, und aus dem ebenen Maximum des Impulses resultiert eine sehr scharfe Begrenzung. Die auf das zweite kurzgeschlossene Kabel folgenden Röhren haben einen symmetrischen und begrenzten Impuls zu verarbeiten. Der White-Kathodenfolger  $T_8$ ,  $T_9$  garantiert eine niedrige Impedanz des Ausgangs. Bei exakter Anpassung an die nicht rein Ohmsche Kabelimpedanz ist es möglich, ein Laufzeitkabel vom Typ HH2500 mit einer Länge von nur 40 cm, das heisst weniger als der Breite eines Normalchassis, zu verwenden. Zur Abschirmung muss dieses Kabel konzentrisch in einem Kupferrohr von mindestens 4 cm Innendurchmesser gelagert werden.

Verstärker des beschriebenen Typs haben sich in unserem Institut in über 10000 Betriebsstunden sehr gut bewährt.

#### *Literatur*

- <sup>1)</sup> J. E. FRANCIS, P. R. BELL und G. G. KELLEY, *Nucleonics* 12, 55 (März 1954).
- <sup>2)</sup> E. FAIRSTEIN, *Rev. Sci. Instr.* 27, 475 (1956).

# Freie Energie von $180^\circ$ -Wänden und Oberflächen im kubisch raumzentrierten Dipol-Gitter

von R. Sommerhalder

IBM-Forschungslaboratorium Zürich, Adliswil

(20. V. 1960)

*Abstract.* The free energy of  $180^\circ$ -domainwalls and surfaces in ferroelectrics is estimated, assuming a simple model of dipole-interaction in a bodycentered cubic lattice. The wall and the surface layer are found to be about one lattice constant thick except for temperatures very close to the Curie temperature. Spontaneous polarization in the surface layer is found to have lower values than in the undisturbed crystal for all temperatures.

## 1. Einleitung

Die Domänen in Ferromagnetika und Ferroelektrika besitzen trotz der im ersten Moment auffallenden Ähnlichkeit recht verschiedene Wesenszüge. In *Ferromagnetika* wird wegen der grossen Austauschenergie und der meist kleinen Anisotropie-Energie die Blochwand viele hundert Gitterkonstanten breit. Dies ermöglicht eine Kontinuumstheorie. In *Ferroelektrika* tritt an Stelle der Austauschenergie die elektrostatische Wechselwirkungsenergie zwischen polarisierten Ionen oder Ionengruppen, welche verhältnismässig kleine Energieunterschiede zwischen paralleler und antiparalleler Orientierung der Dipole bringt; andererseits ist die Anisotropie der Kristallenergie meist sehr gross. In Ferroelektrika ist deshalb mit Wandbreiten von der Grössenordnung der Elementarzelle zu rechnen. Dies bedingt eine *Diskontinuumstheorie*.

Selbst mit Verwendung von unrealistisch vereinfachten Modellvorstellungen macht die Berechnung der Domänenstruktur in Ferroelektrika Mühe, so dass bis heute über die Energie und Entropie der Wände und Oberflächen weniger bekannt ist als bei den Ferromagnetika.

Die strenge statistische Behandlung der Dipol-Dipol-Wechselwirkung bei endlichen Temperaturen ist immer noch ein unbefriedigend gelöstes Problem, sogar für den homogenen Kristall (VAN VLECK (1937), VAN VLECK (1940)); das weitaus kompliziertere Problem des Dipolgitters mit Domänenwänden oder Oberflächen lässt sich deshalb nur in einer rohen Näherung behandeln.

Das Modell, welches dieser Arbeit zugrunde liegt, lässt sich wie folgt beschreiben:

Ein kubisch raumzentriertes Gitter\*) mit der Gitterkonstante  $a$  sei mit identischen, frei drehbaren Punktdipolen vom Moment  $p$  besetzt. Wir nehmen der Einfachheit halber an, dass die Achse der spontanen Polarisation oder eines allfälligen äusseren Feldes  $E_a$  parallel zu (001) sei. Diese Annahme ist willkürlich, da dem Modell keine Anisotropie innewohnt (C. KITTEL (1949)). Wir betrachten eine freie Oberfläche (Fig. 1) oder

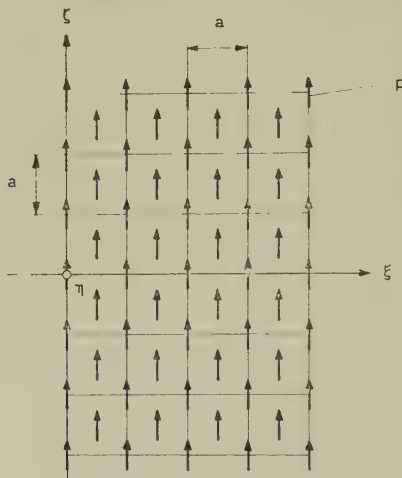


Fig. 1

Halbraum von Dipolen der Stärke  $p$  im Koordinatensystem  $(\xi, \eta, \zeta)$ .  
Kubisch raumzentriertes Gitter, Gitterkonstante  $a$ .

eine  $180^\circ$ -Wand (Fig. 2), welche parallel zur (100)-Ebene verläuft. Diese Wahl ist wiederum willkürlich. Eine allfällige Anisotropie von Wand- oder Oberflächenenergie wird in dieser Arbeit nicht untersucht.

Die freie Energie einer Oberfläche resp.  $180^\circ$ -Domänenwand wird nun berechnet unter folgenden vereinfachenden Annahmen:

a) Die drehbaren Punktdipole werden ersetzt durch Dipole, welche dem Erwartungswert  $\bar{p}$  ( $T$ ) entsprechen und demgemäss nach (001) orientiert sind. Infolgedessen ist auch das innere Feld  $E$  parallel zu (001). Für ein homogen polarisiertes raumzentriertes Dipolgitter in einem äusseren Feld  $E_a$  gilt

$$E = E_a + f \frac{2\bar{p}}{a^3}, \quad \text{wo } f = \frac{4\pi}{3}. \quad (1.1)$$

\*) Das einfache kubische Gitter eignet sich nicht für unsere Betrachtungen, da es auf einen antiferroelektrischen Zustand führt, das heisst die Bildung einer Wand im polarisierten Gitter würde einem exothermen Vorgang entsprechen.



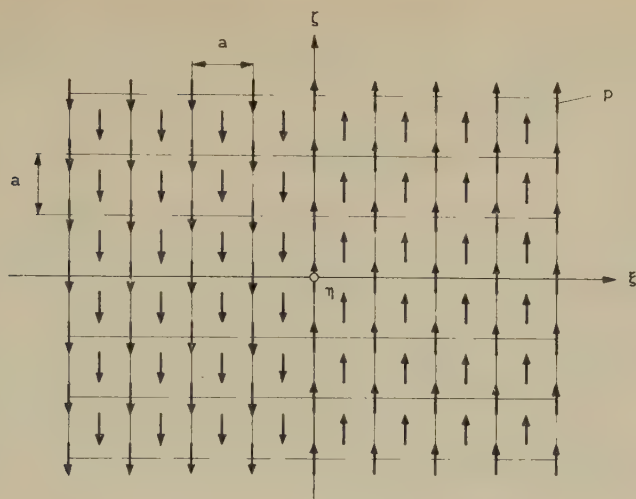


Fig. 2

180°-Wand von Dipolen der Stärke  $p$  im Koordinatensystem  $(\xi, \eta, \zeta)$ .  
Kubisch raumzentriertes Gitter, Gitterkonstante  $a$ .

In der Oberflächenschicht oder in der Wand liegen die Verhältnisse komplizierter, indem der Polarisationsanteil des inneren Feldes aus den Beiträgen der verschiedenen Netzebenen, welche parallel zur Oberfläche resp. zur Wand gewählt werden, aufsummiert werden muss:

$$E = E_a + \sum_i f_i \frac{2\bar{p}_i}{a^3} . \quad (1.2)$$

b) Der Erwartungswert  $\bar{p}$  der Dipole sei durch die Langevinsche Theorie gegeben:

$$\bar{p} = p \cdot L \left( \frac{pE}{kT} \right) , \quad (1.3)$$

$$L(x) \equiv \text{Ctg} x - \frac{1}{x} . \quad (1.4)$$

Die in Ferroelektrika vorhandene Feldabhängigkeit des Moments  $p$  wird somit vernachlässigt.

Als Randbedingung gilt, dass in genügender Entfernung von der Oberfläche resp. Wand das innere Feld und die Polarisation den Wert annehmen, welcher dem ungestörten Gitter entsprechen würde.

## 2. Polarisationsverlauf in der Oberfläche

Zur Berechnung der Koeffizienten  $f_i$  in Gleichung (1.2) gehen wir zunächst von einer felderzeugenden Ebene aus, die in einfach kubischer Anordnung in den Punkten

$$\xi = 0$$

$$\eta = l \cdot a$$

$$\zeta = m \cdot a \quad (l, m) = \text{ganzzahlig}$$

mit Dipolen der Stärke  $p$  besetzt sei (Fig. 3) und berechnen die Feldstärke

$$F = F_\zeta = p \cdot \sum_{\eta, \zeta = -\infty}^{+\infty} \frac{\partial^2}{\partial \zeta_0^2} \cdot \frac{1}{\sqrt{\xi_0^2 + (\eta - \eta_0)^2 + (\zeta - \zeta_0)^2}} \quad (2.1)$$

die sie am Ort des Dipols

$$\xi_0 = i \cdot a$$

$$\eta_0 = j \cdot a$$

$$\zeta_0 = k \cdot a \quad (i, j, k) = \text{halb- oder ganzzahlig}$$

hervorrufen. Die Summation erstreckt sich nicht über den Term  $l = m = 0$ , falls  $i = 0$ . Sie kann nach dem Verfahren von EWALD (1921) in ausgezeichnet konvergenter Form durchgeführt werden. Die Resultate sind in Tabelle 1 zusammengestellt und zeigen, dass ein Dipol fast aus-

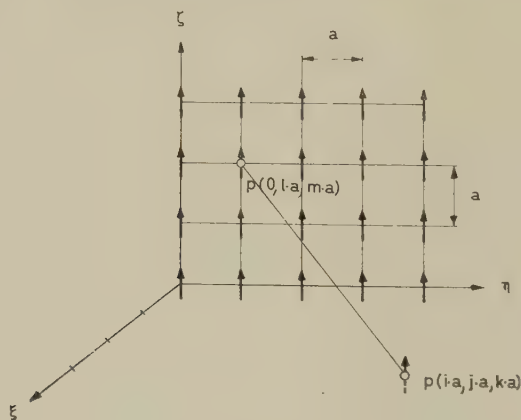


Fig. 3

Feldstärke  $F_\zeta$  am Ort des Dipols  $p(i \cdot a, j \cdot a, k \cdot a)$ , hervorgerufen durch die felderzeugende Netzebene der Dipole  $p(0, l \cdot a, m \cdot a)$ ;  $(l, m) = \text{ganzzahlig}$   
 $(i, j, k) = \text{halb- oder ganzzahlig}$ ;  $a = \text{Gitterkonstante}$ .

schliesslich durch die Dipole der eigenen Netzebene und diejenigen der beiden nächsten Nachbarebenen orientiert wird.

Tabelle 1  
Feldstärke  $F_z$  (in Einheiten  $4\pi/3 \cdot 2p/a^3$ ) am Ort der Dipole in der Netzebene  
 $\xi_0 = i \cdot a$

$i$	$< -1$	$-1$	$-0,5$	$0$	$+0,5$	$+1$	$> +1$
$F_z$	-0,00	-0,02	+0,25	+0,54	+0,25	-0,02	-0,00

Tabelle 1 gestattet mit Verwendung von Gleichung (1.3) unmittelbar die Aufstellung des Gleichungssystems zur Beschreibung des Polarisationsverlaufs in der Oberfläche. Man findet

$$\left. \begin{aligned} & (-0,02 P_{i-1} + 0,25 P_{i-0,5} + 0,54 P_i + 0,25 P_{i+0,5} - 0,02 P_{i+1}) \cdot \frac{4\pi}{3} \\ & = \frac{4\pi}{9} P_s \frac{T}{T_c} G\left(\frac{P_i}{P_s}\right) - E_a, \end{aligned} \right\} \quad (2.2)$$

$i = \text{positiv, halb- oder ganzzahlig,} \quad P_{-1} \equiv P_{-0,5} \equiv 0,$

wenn mit  $G = L^{-1}$  die inverse Funktion zur Langevinfunktion eingeführt wird, ferner mit  $P_i = 2 \bar{p}_i(T)/a^3$  die Polarisation in der Netzebene  $\xi_0 = i \cdot a$ , mit  $P_s = 2 p/a^3$  die Sättigungspolarisation und mit

$$T_c = \frac{2\pi}{9} \frac{P_s^2 \cdot a^3}{k} \quad (2.3)$$

die Curietemperatur der Langevintheorie.

In genügender Entfernung von der Kristalloberfläche geht die Polarisation in diejenige des ungestörten Domäneninnern  $P$  über. Es muss deshalb die Randbedingung

$$\lim_{i \rightarrow \infty} P_i = P$$

erfüllt sein, wobei sich der Wert von  $P$  durch Elimination des inneren Feldes  $E$  von den Gleichungen (1.1) und (1.3) aus

$$E_a + \frac{4\pi}{3} P = \frac{4\pi}{9} \cdot P_s \frac{T}{T_c} G\left(\frac{P}{P_s}\right) \quad (2.4)$$

ergibt.

Zur Auflösung des Gleichungssystems (2.2) ist ein Iterationsverfahren zweckmässig. Zunächst wählt man eine beliebige 0. Näherungslösung  $P_0^{(0)}, P_{0,5}^{(0)}, P_1^{(0)} \dots$ , setzt sie auf der linken Seite von (2.2) ein und berechnet aus den rechten Seiten die 1. Näherung  $P_0^{(1)}, P_{0,5}^{(1)}, P_1^{(1)} \dots$ . Dann setzt man die 1. Näherung wieder links in (2.2) ein, berechnet aus den rechten

Seiten die 2. Näherung  $P_0^{(2)}$ ,  $P_{0,5}^{(2)}$ ,  $P_1^{(2)} \dots$  und wiederholt das Verfahren so lange, bis sich aufeinanderfolgende Näherungen nicht mehr unterscheiden.

Figur 4 zeigt die Resultate für den Fall der spontanen Polarisation ( $E_a = 0$ ). Sie bleiben unverändert, wenn der Lorenzfaktor  $4\pi/3$  durch einen allgemeineren  $f$  ersetzt wird.

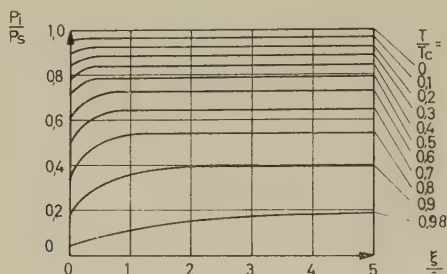


Fig. 4

Spontane Polarisation  $P_i$  in der Netzebene  $\xi = i \cdot a$  unter der Oberfläche bei verschiedenen Temperaturen  $T$ .

$P_s$  = Sättigungspolarisation,  $T_c$  = Curietemperatur,  $a$  = Gitterkonstante,  $i$  = halb- oder ganzzahlig.

Tabelle 2

Dicke  $b$  der Oberflächenschicht und spontane Polarisation  $P$  des ungestörten Domäneninnern in Abhängigkeit von der Temperatur

$T/T_c$	$b/a$	$P$
0,95	0,8	0,30
0,99	1,8	0,13
0,999	5,6	0,04

In unmittelbarer Nähe der Curietemperatur  $T_c$  lässt sich die Breite der Oberflächenschicht abschätzen, wenn das Gleichungssystem (2.2) durch die Differentialgleichung

$$\frac{4\pi}{3} \cdot \left[ \frac{a^2 P''(\xi)}{16} + P(\xi) \right] = \frac{4\pi}{9} P_s \frac{T}{T_c} G\left(\frac{P}{P_s}\right) - E_a \quad (2.5)$$

approximiert und die inverse Langevinfunktion  $G$  als Potenzreihe

$$G\left(\frac{P}{P_s}\right) = 3 \frac{P}{P_s} + 1,8 \left(\frac{P}{P_s}\right)^3 + \dots$$

entwickelt wird.

Man findet dann in genügender Entfernung von der Oberfläche für  $E_a = 0$

$$\left[ 1 - \frac{P(\xi)}{P} \right] = 2 \cdot \exp \left[ - \frac{4}{a} \xi \sqrt{2(1 - T/T_c)} \right] . \quad (2.6)$$

Wir definieren als Dicke der Oberflächenschicht

$$b = a/4 \sqrt{2(1 - T/T_c)} \quad (2.7)$$

und ersehen aus Tabelle 3, dass  $b$  erst in unmittelbarer Nähe der Curie-temperatur viele Gitterkonstanten erreicht. Die Oberfläche ist bei allen Temperaturen ein Gebiet reduzierter Polarisierung und kleinerer Koerzitivkraft.

Der Polarisationsverlauf in der Oberfläche des Ferroelektrikums zeigt qualitativ gleichen Verlauf wie die Magnetisierung in der Oberfläche des Ferromagnetikums nach dem Modell von VALENTA (1957).

### 3. Freie Enthalpie der Oberfläche

Wir wählen die Temperatur  $T$  und die Polarisierung  $P$  im ungestörten Domäneninnern als Variable.

Die Gibbssche freie Energie pro  $\text{cm}^3$  der Dipole, welche im ungestörten Domäneninnern liegen, setzt sich ausser einem nur temperaturabhängigen Term, welcher der freien Energie des unpolarisierten Kristalls entspricht und hier vernachlässigt werden kann, additiv aus der Helmholtzschen freien Energie  $H$  der freien Dipole im äusseren Feld  $E_a$

$$H = - \frac{2 k T}{a^3} \ln \frac{\sin G(P/P_s)}{G(P/P_s)} , \quad (3.1)$$

der Wechselwirkungsenergie

$$E_w = F \cdot P/2 \quad (3.2)$$

der Dipole mit dem von den Nachbarn erzeugten Feld  $F = 4\pi/3 \cdot P$  und dem Term

$$E_a \cdot P \quad (3.3)$$

zusammen, der von der Legendreschen Transformation von der Helmholtzschen zur Gibbsschen freien Energie herrührt.

Für Dipole, welche in der Oberflächenschicht liegen, kann in den Gleichungen (3.1) und (3.3) einfach  $P$  durch die Polarisierung  $P_i$  der betreffenden Netzebene ersetzt werden. Dagegen muss in Gleichung (3.2) die Wechselwirkungsfeldstärke  $F_i$  aus den Beiträgen der Dipole, welche in benachbarten Netzebenen liegen, zusammengesetzt werden. Ihre Werte können als die linken Seiten des Gleichungssystems (2.2) abgelesen werden.



Für den Unterschied der freien Energie im Ferroelektrikum mit und ohne Oberfläche (freie Oberflächenenergie  $A_0$ ) ergibt sich pro  $\text{cm}^2$  Oberfläche der Ausdruck

$$A_0 = \sum_i (H_i - H) + 1/2 \cdot (F_i P_i - F P) + E_a (P_i - P) \quad \left. \vphantom{\sum_i} \right\} \quad (3.4)$$

$$i = 0, 1/2, 1, 3/2 \dots$$

Er ist in Figur 5 aufgezeichnet für verschiedene Werte von Aussenfeld  $E_a$  und Temperatur  $T$ . Die Potentialmulden entsprechen dem Fall der spontanen Polarisation. Die Kurven bleiben unverändert, wenn der Lorenz-

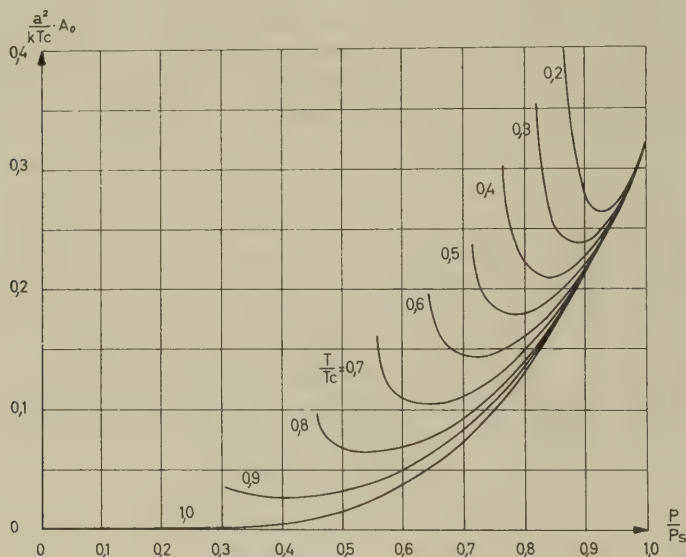


Fig. 5

Freie Enthalpie  $A_0$  pro  $\text{cm}^2$  Oberfläche in Funktion der Polarisation  $P$  des ungestörten Domäneninnern bei verschiedenen Temperaturen  $T$ .  
 $a$  = Gitterkonstante,  $k$  = Boltzmannsche Konstante,  
 $T_c$  = Curietemperatur,  $P_s$  = Sättigungspolarisation.

faktor  $f = 4\pi/3$  durch einen allgemeineren ersetzt wird. Die links der Potentialmulden aufsteigenden Äste der Kurven gehen ungefähr so weit, bis die Koerzitivkraft in der Oberfläche erreicht ist.

#### 4. Polarisation und freie Enthalpie der $180^\circ$ -Wand

Die Berechnungen verlaufen analog zu denjenigen von Kapitel 3. Wir beschränken uns hier auf den Fall  $E_a = 0$ , wo die Ebene  $\xi = -1/4 \cdot a$  Symmetrieebene ist. An Stelle des Gleichungssystems (2.2) gilt dann

$$\left. \begin{aligned}
 & \frac{4\pi}{3} (0,29 P_0 + 0,27 P_{0,5} - 0,02 P_1) \\
 & \qquad \qquad \qquad = \frac{4\pi}{9} P_s \frac{T}{T_c} \cdot G \left( \frac{P_0}{P} \right) \\
 & \frac{4\pi}{3} (0,27 P_0 + 0,54 P_{0,5} + 0,25 P_1 - 0,02 P_{1,5}) \\
 & \qquad \qquad \qquad = \frac{4\pi}{9} P_s \frac{T}{T_c} \cdot G \left( \frac{P_{0,5}}{P} \right) \\
 & \frac{4\pi}{3} (-0,02 P_{i-1} + 0,25 P_{i-0,5} + 0,54 P_i + 0,25 P_{i+0,5} - 0,02 P_{i+1}) \\
 & \qquad \qquad \qquad = \frac{4\pi}{9} P_s \frac{T}{T_c} \cdot G \left( \frac{P_i}{P} \right),
 \end{aligned} \right\} (4.1)$$

$i = \text{halb- oder ganzzahlig und } i \geq 1.$

Figur 6 zeigt den Verlauf der spontanen Polarisation bei verschiedenen Temperaturen und Tabelle 3 den Gleichung (3.4) entsprechenden Ausdruck  $A_w$  für die freie Wandenergie.

Tabelle 3

Freie Enthalpie pro  $\text{cm}^2 A_w$  der  $180^\circ$ -Wand in Abhängigkeit von der Temperatur

$\frac{T}{T_c}$	$\frac{a^2}{k T_c} \cdot A_w$
0	1,26
0,1	1,14
0,2	1,02
0,3	0,89
0,4	0,75
0,5	0,60
0,6	0,45
0,7	0,30
0,8	0,17
0,98	0,00

## 5. Diskussion

Die vorliegenden Berechnungen stellen eine Abschätzung der freien Wand- und Oberflächenenergie in Ferroelektrika dar, soweit sie auf elektrostatische Wechselwirkung zwischen polarisierten Ionen zurückzuführen ist. Es zeigt sich, dass die Breite von  $180^\circ$ -Wänden und Oberflächen bis in unmittelbare Nähe des Curiepunktes stets von der Grössenordnung der Elementarzelle bleibt.

Die Annahme feldunabhängiger Dipolmomente, die Voraussetzung einer atomar glatten Oberfläche und die Vernachlässigung von Raumladungen, welche von Verunreinigungen in der Oberfläche herrühren,

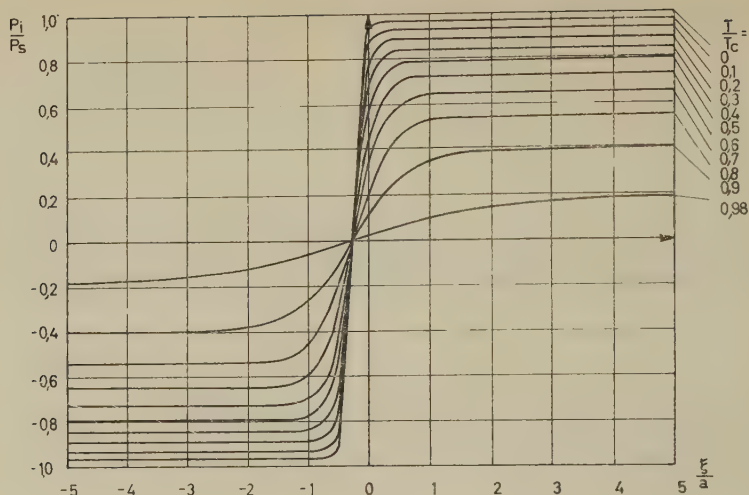


Fig. 6

Spontane Polarisation  $P_i$  in der Netzebene  $\xi = i \cdot a$  der  $180^\circ$ -Wand bei verschiedenen Temperaturen  $T$ .

$P_s$  = Sättigungspolarisation,  $a$  = Gitterkonstante,  $T_c$  = Curietemperatur,  
 $i$  = halb- oder ganzzahlig.

schränken die Anwendung der Resultate auf das Verhalten wirklicher Ferroelektrika wohl stark ein.

Wichtig ist ebenfalls die Vernachlässigung des piezoelektrischen Effektes, der eine elastische Wand- resp. Oberflächenenergie bewirken kann, die von gleicher Grössenordnung ist wie die elektrostatische.

Den vorliegenden Berechnungen kommt die Theorie von MITSUI und FURUICHI (1952) wohl am nächsten. Sie kann jedoch ebenfalls nur als rohe Näherung gelten, weil die ferroelektrische Wand trotz der Breite von wenigen Gitterkonstanten mit einer Kontinuums- theorie behandelt wird. MITSUI und FURUICHI berücksichtigen ausser der elektrostatischen Wechselwirkung auch die elastischen Effekte. Hierzu sei jedoch auf die Diskussion der Arbeit in KÄNZIG (1957) hingewiesen.

Ich danke Herrn Dr. W. KÄNZIG für die Anregung zu dieser Arbeit und für wertvolle Kritik.

### Literatur

- P. P. EWALD, Ann. Phys. 64, 253 (1921).  
 W. KÄNZIG, Solid State Physics 4, 1 (1957), p. 111.  
 C. KITTEL, Rev. Mod. Phys. 21, 541 (1949), Appendix B.  
 T. MITSUI und J. FURUICHI, Phys. Rev. 90, 193 (1952).  
 L. VALENTA, Czech. J. Phys. 7, 127 (1957) und Czech. J. Phys. 7, 136 (1957).  
 J. H. VAN VLECK, J. Chem. Phys. 5, 320 (1937); Ann. New York Acad. Sci. 40, 293 (1940).

# Etude expérimentale du polaron (Mesure de la mobilité électronique dans AgCl et AgBr)

par L. Chollet\*) et J. Rossel

Institut de Physique, Université de Neuchâtel

*Summary.* Electron mobility in the polar crystals AgCl and AgBr has been investigated using a pulsed X rays technique in a range of temperatures where comparison with existing polaron theories is possible.

Special attention was given to the measurement of true microscopic mobility by selecting crystals where trapping and multiple trapping effects are negligible.

The main results can be summarized as follows:

AgBr has better counting properties than AgCl but in both cases surface effects play an important role and too strong irradiation can stop the sensitivity.

In no case could hole motion be observed.

The characteristic exponential law for  $\mu(T)$  given by optical mode scattering has been confirmed and the corresponding experimental Debye temperature is in good accord with the predicted value.

The reduction of mobility observed below  $\sim 100^\circ\text{K}$  can be accounted for by ionised impurity collisions but is not easily compatible with a law of the type  $\mu \sim T^{+3/2}$ .

Values for the polaron mass have been derived using both the Lee-Low-Pines and the Feynman-Schultz theories.

## I. Interaction électron-réseau polaire; polaron

L'étude théorique de l'interaction d'un électron de conduction avec le réseau d'un cristal polaire a été développée par plusieurs auteurs. Nous citerons ici les articles de ALLCOCK<sup>1)</sup> et de HAKEN<sup>2)</sup> qui constituent un excellent résumé et donnent une vue d'ensemble du problème.

Dans un cristal ionique, l'électron de conduction est soumis à différentes forces de nature électrostatique. Les plus importantes de celles-ci dérivent du potentiel périodique du cristal parfait considéré comme rigide, et sont prises en considération dans la théorie de la masse effective. Les autres forces sont dues aux vibrations du réseau, ces dernières étant induites thermiquement ou directement par le champ coulombien de l'électron. Les vibrations du réseau ionique se divisent en deux branches dites optique et acoustique. La branche optique correspond aux vibrations qui déplacent les ions positifs et négatifs les uns par rapport aux autres. De telles vibrations engendrent des ondes de polarisation. La branche acoustique représente essentiellement les déplacements d'en-

\*) Maintenant au Laboratoire Suisse de recherches horlogères, Neuchâtel.

semble du cristal, de sorte que la polarisation qui lui est associée est très faible. Celle-ci n'entrera que d'une façon très secondaire dans notre problème.

Le champ de polarisation associé aux vibrations optiques du réseau est caractérisé par une fréquence  $\omega$  satisfaisant à une relation de dispersion  $\omega(k)$ . En première approximation, on peut admettre pour la branche optique  $\omega(k) = \text{constante}$ , où le nombre d'onde  $k$  est réduit à la première zone de Brillouin. Par son champ de Coulomb, l'électron est couplé à la polarisation sur laquelle il réagit. L'électron se trouve donc soumis à un champ de polarisation quantifié dont l'énergie ne peut être modifiée que par des multiples de  $\hbar\omega$  correspondant à l'absorption ou à l'émission de phonons. On est conduit à se représenter le mouvement d'un électron dans un cristal polaire comme celui d'une charge entourée par un champ d'autopolarisation. Cet ensemble mobile électron-phonons de polarisation est appelé polaron. Les propriétés du polaron (énergie propre, masse effective, mobilité) sont liées essentiellement à la grandeur de la fréquence d'oscillation  $\omega$ .

L'intensité du couplage électron-réseau est caractérisée par un paramètre sans dimension,  $\alpha$ , jouant le rôle de constante de couplage. La valeur de  $\alpha$  varie de deux à six pour les cristaux polaires typiques. Il est évident qu'il s'agit d'une interaction forte comparée au couplage électron-photon caractérisé par la valeur  $1/137$ . La constante de couplage  $\alpha$  est inversement proportionnelle à la racine carrée de la fréquence optique de vibration  $\omega$ . Les travaux théoriques publiés se subdivisent en trois classes, suivant qu'ils traitent les cas limites d'une fréquence haute, d'une fréquence basse, ou d'une fréquence intermédiaire. On peut remarquer d'emblée que,  $\alpha$  étant généralement plus grand que 1, la méthode habituelle de calcul des perturbations est inadéquate. Nous analyserons sommairement les différentes méthodes proposées pour les trois classes indiquées ci-dessus.

#### a) *Limite des basses fréquences; couplage fort*

Pour une fréquence caractéristique d'oscillation du réseau suffisamment faible, on peut admettre que l'électron suit adiabatiquement les variations de la polarisation. Parmi les théories reposant essentiellement sur cette hypothèse, citons l'approximation statique de LANDAU-PÉKAR\*) et l'approximation adiabatique de PÉKAR. La première néglige totalement les propriétés dynamiques du réseau. La seconde par contre implique que l'énergie de vibration du réseau (c'est-à-dire sa fréquence) soit petite par rapport à l'énergie de l'électron. Or, dans le cas d'un électron

\*) Les références bibliographiques qui ne sont pas données ici sont indiquées sous références<sup>1)</sup> et <sup>2)</sup>.



de conduction lent dans un cristal ionique, ces deux énergies sont du même ordre de grandeur, de sorte que cette approximation perd sa validité pour le domaine expérimental que nous étudions.

b) *Limite des hautes fréquences; couplage faible*

LEE, LOW et PINES<sup>3)</sup> entre autres ont développé le calcul de l'interaction électron-réseau pour des fréquences de vibration élevées (appelé fréquemment méthode du couplage intermédiaire). Le calcul de l'énergie propre du polaron est basé sur une technique des variations introduite antérieurement pour l'étude théorique de l'interaction mésonique. Il repose essentiellement sur les hypothèses suivantes:

1. L'influence du réseau périodique est prise en considération par l'introduction d'une masse effective pour l'électron.

2. Le diélectrique est traité comme un milieu continu. Cette approximation est légitimée par le fait que les phonons interagissant avec l'électron ont une longueur d'onde plus grande que la constante du réseau. Elle implique d'autre part que le polaron ait une extension égale à plusieurs distances réticulaires.

3. La branche optique est caractérisée par une fréquence unique  $\omega$  correspondant au mode longitudinal de vibration.

4. La polarisation associée au mode acoustique est négligée.

Il ressort des calculs de LEE, LOW et PINES que le polaron se comporte dans le cristal comme une particule libre dont la masse  $m^*$  est donnée par

$$m^* = m (1 + \alpha/6)$$

où  $m$  est la masse effective de l'électron dans le champ statique du réseau cristallin.

Les résultats de LEE, LOW et PINES sont valables pour autant que  $\alpha \lesssim 6$ .

LOW et PINES<sup>4)</sup> ont calculé la mobilité du polaron se mouvant dans un champ électrique faible, ce qui revient à calculer la probabilité de diffusion du polaron par les phonons thermiques. Ils utilisent les fonctions d'onde de LEE, LOW et PINES pour caractériser les états final et initial du polaron. Ceci implique que le domaine de validité de leurs calculs sera limité également à  $\alpha \lesssim 6$ . D'autre part, les fonctions d'onde utilisées ne sont exactes que si la température  $T$  est petite par rapport à la température de DEBYE correspondant au mode de vibration longitudinal de la branche optique. La mobilité du polaron est alors donnée par

$$\mu = f(\alpha) \frac{1}{2\alpha\omega_i} \frac{e}{m} \left( \frac{m}{m^*} \right)^3 (e^{\theta/T} - 1)$$

expression valable pour  $T \ll \theta$  et dans laquelle les symboles ont la signification suivante:

$\alpha$  = constante de couplage donnée par

$$\alpha = \frac{e^2}{\hbar} \left( \frac{m_e}{2 \hbar \omega_l} \right)^{1/2} \frac{\varepsilon - n^2}{\varepsilon n^2} \left( \frac{m}{m_e} \right)^{1/2}$$

$f(\alpha)$  est une fonction qui varie lentement avec  $\alpha$  et qui est voisine de 1 pour  $1 < \alpha < 6$ , cf. 4).

$\varepsilon$  = constante diélectrique statique.

$n^2$  = constante diélectrique à la limite des hautes fréquences.

$\theta = \hbar \omega_l / k$  = température de DEBYE correspondant à la fréquence limite  $\omega_l$  des vibrations longitudinales de la branche optique.

$\omega_l$  est en principe déterminé par la fréquence expérimentale  $\omega_r$  des rayons restants:  $\omega_l = (\varepsilon/n^2)^{1/2} \cdot \omega_r$ .

$m_e$  = masse de l'électron libre.

Les constantes de couplage pour la plupart des cristaux ioniques étant de l'ordre de 2 à 6, cette théorie fournit une base de discussion pour nos résultats expérimentaux.

### c) *Domaine des fréquences intermédiaires*

Les deux cas limites ci-dessus encadrent un domaine de fréquences pour lequel ni l'une ni l'autre des méthodes de résolution n'est valable. FEYNMAN<sup>5)</sup> a utilisé une formulation mathématique plus générale valable sur l'ensemble des domaines. A la limite des hautes fréquences, (couplage faible) l'accord des résultats de FEYNMAN avec ceux de LEE, LOW et PINES et de LOW et PINES est satisfaisant. En particulier, la masse indiquée par FEYNMAN pour  $\alpha \lesssim 6$  est:

$$m^* = m (1 + \alpha/6 + 0,025 \alpha^2 + \dots)$$

En fait, le calcul est basé sur une méthode variationnelle et  $m^*/m$  s'exprime par une relation compliquée au moyen de deux paramètres ajustables  $v$  et  $w$  choisis pour minimiser l'énergie propre du polaron. A l'approximation d'ordre zéro, on a simplement  $m^*/m = (v/w)^2$ .

SCHULTZ<sup>6)</sup> a développé une théorie de la mobilité à partir de la méthode de FEYNMAN pour le calcul de la masse du polaron. Il justifie ce choix en remarquant que les résultats obtenus par cette méthode sont les seuls qui coïncident de façon raisonnable avec les cas limites des couplages fort et faible et qui permettent une interpolation acceptable. Cela constitue un fort argument en faveur d'une validité plus grande de cette méthode d'évaluation de la self-énergie et de la masse du polaron.

Le choix d'un fondement solide est d'autant plus nécessaire que le calcul de la mobilité du polaron ne peut se faire qu'en introduisant des hypothèses supplémentaires dont la validité n'est que difficilement assurée: dra) Utilisation du même Hamiltonien que pour le problème de l'énergie propre et de la masse.

b) Utilisation d'une équation de BOLTZMANN exigeant que  $\hbar/\tau \ll kT$  ( $\tau$  = intervalle entre collisions) pour que l'énergie du polaron soit bien définie entre deux collisions.\*

c) Limitation de fait, dans les calculs, aux processus à 1 phonon.

SCHULTZ considère le problème essentiellement comme un processus de diffusion de résonance d'un polaron de FEYNMAN. L'expression qu'il déduit pour la mobilité est la suivante:

$$\mu = \frac{e}{2m\omega} \frac{1}{\alpha Z_r} \frac{m}{m^*} \frac{v_r}{(2\hbar\omega/m)^{1/2}} (e^{\theta/T} - 1)$$

A part le facteur  $m^*/m$  qui en première approximation est égal à  $(v/w)^2$ , cette expression contient deux facteurs critiques: la grandeur  $v_r = \hbar \cdot d\omega/dP_r$  représentant la vitesse du polaron lorsqu'il possède l'énergie de résonance ( $P_r$  est son impulsion à la résonance) et la grandeur  $Z_r$  = facteur de couplage de renormalisation pour le phonon de résonance. Les valeurs de ces grandeurs en fonction du paramètre de couplage  $\alpha$  ainsi que celles des deux paramètres  $v$  et  $w$  sont fournies par les courbes des figures 1a et b, construites à partir des données numériques de SCHULTZ.

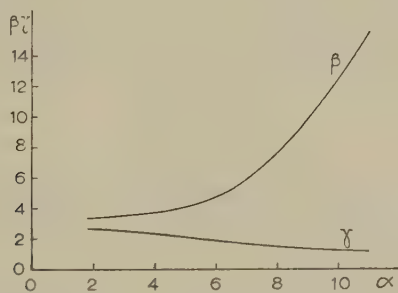


Fig. 1a

Paramètres  $v$  et  $w$  calculés par SCHULTZ et représentés en fonction de  $\alpha$   
 $\beta = v/w$ ;  $\gamma = w/\omega$

Comme les valeurs de  $\alpha$  caractéristiques de AgCl et AgBr sont voisines de 2, il apparaît légitime de fonder notre discussion des résultats obtenus dans cette étude sur les deux théories qui sont actuellement disponibles dans ce domaine de valeurs du paramètre de couplage: celle de Low et PINES et celle de SCHULTZ.

Etant donné le caractère encore flou de la théorie et les difficultés de l'expérimentation, notre discussion aura surtout la valeur d'une indication générale sur la nature et les caractéristiques du polaron.

\*) Il est possible que cette condition soit trop exclusive et doive se remplacer par la condition moins forte  $\hbar/\tau \ll E_f$  = énergie du niveau de Fermi (compté à partir de la limite de bande).

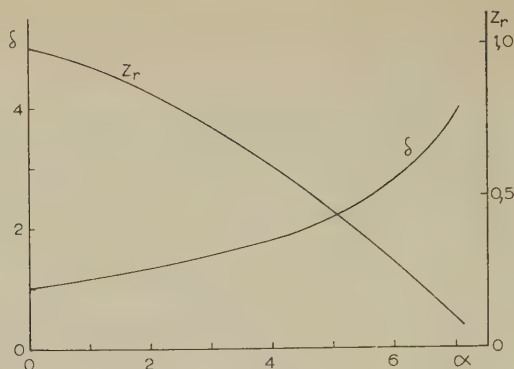


Fig. 1 b

Représentation de  $\delta = v_r / (2 \hbar \omega / m)^{1/2}$  et de  $Z_r$  en fonction de  $\alpha$

## II. Interaction de l'électron avec les imperfections cristallines

Outre l'interaction électron-réseau, c'est-à-dire l'interaction de l'électron avec le cristal parfait, il faudra tenir compte de la diffusion de l'électron de conduction par les impuretés et imperfections cristallines dont les plus importantes semblent devoir être, dans l'ordre, les impuretés ionisées, les impuretés neutres, et les dislocations.

### a) Impuretés ionisées

La diffusion par les impuretés ionisées a été traitée par CONWELL et WEISSKOPF<sup>7)</sup>. Leur calcul est essentiellement classique et repose sur les hypothèses suivantes:

1. La densité des électrons de conduction est suffisamment faible pour qu'ils obéissent à la distribution de MAXWELL-BOLTZMANN.
2. Les électrons sont considérés comme libres et leur diffusion par les impuretés ionisées est donnée par la formule de RUTHERFORD.
3. La diffusion de l'électron par un ion est indépendante des autres ions.

L'expression de la mobilité résultant de ces calculs est la suivante:

$$\mu_I = \frac{2^{7/2}}{\pi^{3/2}} \frac{\varepsilon^2 (kT)^{3/2}}{m^{1/2} e^3 N_I \ln G} \quad \text{avec } G = \left[ 1 + \left( \frac{3 \varepsilon kT}{e^2 N_I^{1/3}} \right)^2 \right]$$

où  $N_I$  est la densité des impuretés ionisées.

BROOKS<sup>8)</sup> et indépendamment HERRING ont amélioré ce résultat par un calcul quantique tenant compte de l'effet collectif des ions et de la variation de l'effet d'écran des électrons lorsque leur densité devient inférieure à celle des impuretés ionisées. L'expression de HERRING indiquée

par DEBYE et CONWELL<sup>9)</sup> diffère de la précédente en ce sens que le terme  $\ln G$  y est remplacé par

$$\ln(1+b) - b/(1+b)$$

avec

$$b = (6/\pi) \cdot (\epsilon m k^2 T^2 / n \hbar^2 e^2)$$

où  $n$  est la densité des électrons de conduction.

BLATT<sup>10)</sup> a repris le calcul de la diffusion par les centres ionisés et montre que l'approximation de BORN utilisée par les auteurs précédents dans le calcul de la section efficace n'est plus valable, en particulier pour

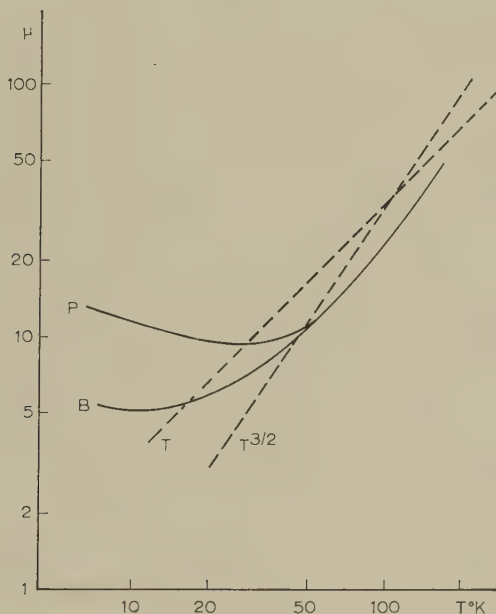


Fig. 2

Reproduction d'une figure donnée par BLATT<sup>10)</sup>. La mobilité (échelle arbitraire) déterminée par la diffusion sur les impuretés est représentée en fonction de  $T$ . La courbe  $P$  est calculée par la méthode des ondes partielles (BLATT) et la courbe  $B$  à l'aide de l'approximation de Born (BROOKS-HERRING).

les basses températures. Il propose l'utilisation de la méthode des ondes partielles. Dans son travail, BLATT introduit le même potentiel avec écran que BROOKS et HERRING. Les déphasages (phase shift) sont alors obtenus par le calcul numérique de certaines intégrales, qui n'a été fait que dans un cas particulier. Dans la figure 2, nous donnons à titre d'exemple les mobilités obtenues par BLATT, comparées à celles calculées par la formule de BROOKS-HERRING.



b) *Impuretés neutres*

ERGINSOY<sup>11)</sup> a obtenu la mobilité électronique déterminée par la diffusion sur les impuretés neutres en modifiant de manière adéquate les résultats de la diffusion de l'électron par l'atome d'hydrogène. La mobilité est donnée par :

$$\mu_N = \frac{1}{20} \frac{m e^3}{N_N \epsilon \hbar^3}$$

où  $N_N$  est la densité des impuretés neutres.

c) *Dislocations*

Il n'existe pas à notre connaissance d'estimation théorique de l'effet des dislocations sur la mobilité électronique dans les cristaux polaires.

Pour les cristaux de valence, BARDEEN et SHOCKLEY<sup>12)</sup> ont proposé pour le potentiel de diffusion dû aux dislocations l'expression  $V(\mathbf{r}) = (E_1/e) \cdot \Delta(\mathbf{r})$  où  $\Delta(\mathbf{r})$  est la dilatation mécanique ( $\epsilon_{11} + \epsilon_{22} + \epsilon_{33}$ ) du réseau au point  $\mathbf{r}$  produite par la dislocation et  $E_1$  un paramètre de l'ordre de quelques eV dont la valeur exacte doit être déterminée expérimentalement.

A partir de ce potentiel de déformation, DEXTER et SEITZ<sup>13)</sup> ont calculé l'accroissement de résistivité dû aux dislocations pour des électrons avec distribution de BOLTZMANN. On en tire pour la mobilité l'expression :

$$\mu_d = \frac{32}{3\pi} \frac{k \hbar e}{E_1^2 \lambda^2} \left( \frac{1-\nu}{1-2\nu} \right)^2 \frac{1}{N m} T$$

où  $\lambda$  = distance de glissement du plan cristallin

$\nu$  = nombre de Poisson

$N$  = nombre de lignes de dislocations par unité de surface.

*Remarque*

Toutes les formules précédentes concernant les effets d'impuretés ont été établies pour les cristaux semi-conducteurs de valence tels que Ge et Si. La masse  $m$  représente donc la masse effective de l'électron. Pour l'étude des cristaux ioniques et à défaut d'expressions spécialement adaptées à ce cas, il convient de remplacer la masse effective  $m$  par la masse du polaron  $m^*$ .

*Importance relative des différents types de diffusion*

Nous calculons ci-dessous les mobilités résultant de chacun des types d'interaction pour bien préciser l'importance relative de ceux-ci, et surtout pour mettre en évidence les domaines de température pour lesquels l'un ou l'autre des processus est prépondérant. Nous effectuerons ces

estimations pour un cristal de AgBr. Nous utiliserons la valeur  $m^* = 0,35 m_e$  qui est la valeur obtenue dans une recherche préliminaire<sup>14)</sup> pour la masse du polaron.

### 1. Interaction électron-réseau

En introduisant la valeur de  $\alpha$ , la mobilité prend la forme (théorie de Low et Pines):

$$\mu_r = f(\alpha) \frac{\hbar^2}{(2k\theta)^{1/2}} \frac{\varepsilon n^2}{\varepsilon - n^2} \frac{m^{3/2}}{m^{*3}} \frac{1}{e} (e^{\theta/T} - 1)$$

Les valeurs numériques des différents symboles sont, pour AgBr, les suivantes:

$$\left. \begin{array}{l} m^* = 0,35 m_e \\ m = 0,25 m_e \\ f(\alpha) = 1,1 \\ \varepsilon = 13,1 \\ n^2 = 4,62 \end{array} \right\} \quad \begin{array}{l} \hbar = 1,05 \cdot 10^{-27} \text{ erg. s.} \\ k = 1,38 \cdot 10^{-16} \text{ erg. } (^{\circ})^{-1} \\ e = 4,80 \cdot 10^{-10} \text{ ues. cgs.} \\ m_e = 9,1 \cdot 10^{-28} \text{ g} \\ \theta = 195^{\circ} \text{ K} \end{array} \quad ^{14)}$$

$$\text{D'où } \mu_r \simeq 30 \cdot e^{\theta/T} (\text{cm}^2 V^{-1} s^{-1})$$

(en négligeant le 1 devant l'exponentielle).

### 2. Diffusion par les impuretés ionisées

Nous utiliserons pour notre estimation la formule de BROOKS-HERRING où le terme logarithmique varie peu avec  $T$  et peut être pris pour une température moyenne de  $100^{\circ} \text{K}$ . Nous introduirons en outre pour la densité des électrons de conduction la valeur  $n = 2 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$  déjà estimée par ALLEMAND et ROSSEL<sup>15)</sup>. Nous obtenons alors pour  $b$  la valeur

$$b = 2 \cdot 10^6$$

En admettant une densité  $N_I \sim 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  pour les impuretés ionisées<sup>15)</sup>, la mobilité  $\mu_I$  prend la forme

$$\mu_I \simeq 0,8 \cdot T^{3/2} (\text{cm}^2 V^{-1} s^{-1})$$

### 3. Diffusion par les impuretés neutres

Il est à remarquer que la diffusion par les impuretés neutres ne dépend pas de la température. En admettant<sup>15)</sup> une densité  $N_N = 2,5 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ , on obtient:

$$\mu_N \simeq 1,1 \cdot 10^3 (\text{cm}^2 V^{-1} s^{-1})$$

### 4. Effet des dislocations

Lorsqu'on exprime la mobilité en unités pratiques  $\text{cm}^2 V^{-1} s^{-1}$ , l'expression permettant d'estimer l'effet des dislocations prend la forme:

$$\mu_d = 3,38 \cdot 10^{12} \left( \frac{1-\nu}{1-2\nu} \right)^2 \frac{1}{E_1^2 \lambda^2} \frac{m_e}{m} \frac{1}{N} T$$

où  $E_1$  est en eV et  $\lambda$  en Å.

Le coefficient de Poisson pour un cristal cubique  $\nu = c_{12}/(c_{11} + c_{12})$  s'obtient en insérant les valeurs des modules d'élasticité  $c_{11} = 0,56$  et  $c_{12} = 0,33$  pour AgBr, ce qui donne  $\nu \simeq 0,37$ .

Il est peu probable que  $N$  dépasse  $10^6 \text{ cm}^{-2}$  pour les cristaux compteurs d'impulsions d'ionisation étudiés ici. Avec  $\lambda \simeq 5 \text{ \AA}$ , de l'ordre de la maille cristalline et  $E_1 \simeq 5 \text{ eV}$ , et choisissant pour  $m/m_e$  le rapport  $m^*/m_e = 0,35$ , on obtient :

$$\mu_d \simeq 7,5 \cdot 10^4 T \text{ (cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}\text{)}$$

Ces différentes mobilités, de même que la mobilité résultante donnée par

$$\frac{1}{\mu} = \frac{1}{\mu_r} + \frac{1}{\mu_i} + \frac{1}{\mu_N} + \frac{1}{\mu_d}$$

sont représentées en fonction de  $T$  sur la figure 3.

On remarquera que l'interaction avec le réseau est prépondérante aux températures relativement élevées, alors que la mobilité semble être conditionnée principalement par les impuretés ionisées aux basses tempéra-

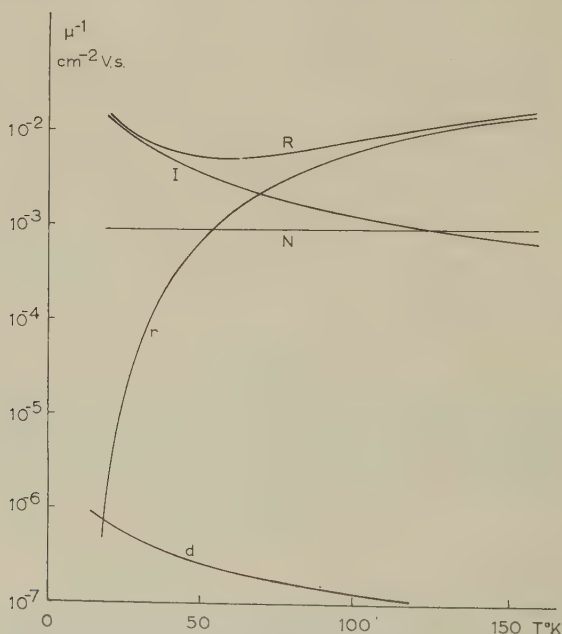


Fig. 3

Variation en fonction de la température des inverses des mobilités dues respectivement à l'effet:  $r$  = du réseau parfait;  $i$  = des impuretés ionisées;  $N$  = des impuretés neutres;  $d$  = des dislocations.  $R$  représente l'inverse de la mobilité résultante.

tures.\*) Les impuretés neutres et les dislocations semblent devoir jouer un rôle secondaire au-dessus de 50° K et n'apporter qu'une faible correction plus ou moins négligeable suivant leur densité.

### III. Partie expérimentale

#### 1. Principe de la mesure

Le cristal à étudier est placé dans le champ électrique produit par deux électrodes planes. L'une d'elle, percée en son centre de trous très fins, laisse passer une impulsion de rayons X. Les charges libérées dans le cristal par l'irradiation se déplacent sous l'effet du champ électrique et induisent sur l'électrode collectrice une impulsion de tension qui est amplifiée et observée sur l'écran d'un oscilloscope. Pour autant que l'impulsion ne soit pas déformée par le dispositif électronique, son temps de montée  $t^*$  correspond au temps de déplacement des électrons. Connaissant le champ  $E$  appliqué au cristal et la distance  $d$  parcourue par les électrons, on obtient la mobilité par la relation  $\mu = d/t^*E$ .

Le schéma de principe du dispositif expérimental est donné par la figure 4. L'émission pulsée de rayons X est commandée par un générateur

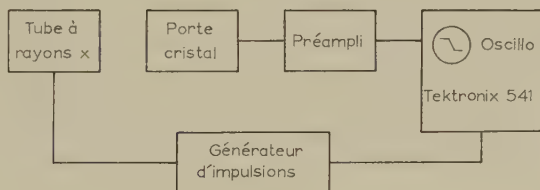


Fig. 4  
Schéma de principe du dispositif expérimental

d'impulsions qui synchronise simultanément le balayage de l'oscilloscope du type Tektronix 541. Les appareils composant cet ensemble sont décrits plus loin.

Nous nous sommes efforcés de réaliser les conditions suivantes:

a) les charges libérées par l'impulsion de rayons X sont localisées à la surface du cristal.

b) La durée de l'irradiation est suffisamment petite pour être négligée devant le temps de transit.

\*) L'influence de la branche acoustique doit se manifester nettement aux très basses températures, où le nombre de phonons optiques excités tombe fortement. Cependant pour les cristaux utilisés ici, l'effet important des impuretés doit masquer complètement cette transition.

c) Tous les électrons libérés traversent la totalité du cristal et atteignent l'électrode collectrice; ceci revient à admettre un « Schubweg » supérieur à l'épaisseur du cristal.

Avec ces hypothèses, au temps  $t = 0$ , une charge  $Q_0$  est libérée en  $x = 0$  (fig. 5). Cette charge se déplace à la vitesse constante  $v$  et induit sur l'électrode collectrice la charge

$$Q(t) = Q_0 \cdot vt/d, \quad t \text{ variant de } 0 \text{ à } t^*$$

A l'entrée du préamplificateur, nous aurons une impulsion de tension croissant linéairement en fonction du temps à conditions que  $RC \gg t^*$ :

$$V(t) = \frac{Q(t)}{C + C_0} = \frac{Q_0}{C + C_0} \cdot \frac{vt}{d} \quad (\text{fig. 6})$$

avec  $C_0$  = capacité du condensateur plan formé par les électrodes et  $C$  = capacité d'entrée du préamplificateur + capacité du fil de connexion.

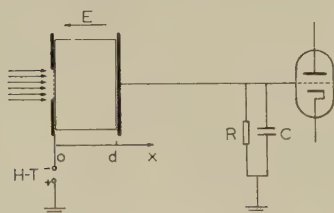


Fig. 5  
Principe de la mesure

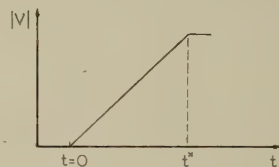


Fig. 6  
Impulsion linéaire induite sur  
l'électrode collectrice

La mobilité est alors calculée par la relation indiquée plus haut.

En mettant au point une technique expérimentale permettant de satisfaire les hypothèses ci-dessus, nous éviterons des calculs de correction souvent délicats. L'utilisation des rayons  $X$  comme moyen d'excitation nous a paru particulièrement intéressante car elle permet de réaliser les deux premières conditions. Il est en effet possible de choisir l'énergie des rayons  $X$  de manière à obtenir une pénétration déterminée. Dans notre cas, l'anticathode du tube à rayons  $X$  étant en cuivre, et la haute tension de 25 à 30 kV, l'émission sera constituée essentiellement par la raie  $K_\alpha$  du cuivre (1,5 Å) dont l'énergie est de 8 kV. La pénétration de ce rayonnement dans AgBr et AgCl est d'environ 10 microns; elle est très faible par rapport à l'épaisseur des cristaux qui varie de 2 à 5 mm. Nous pouvons donc admettre que les charges libérées sont localisées en surface. L'influence du spectre continu est d'autant plus négligeable que l'arête  $K$  d'absorption de Ag en atténue la partie située au-dessous de 0,5 Å.



L'excitation par particules  $\alpha$  remplirait aussi la condition ci-dessus, la pénétration des  $\alpha$  dans les halogénures d'argent étant d'une vingtaine de microns. Cependant, ALLEMAND et ROSSEL<sup>15)</sup> ont montré que ces cristaux étaient en général insensibles à une irradiation  $\alpha$ . L'excitation par rayonnement  $\beta$  et surtout celle par rayonnement  $\gamma$  sont inadéquates étant donnée leur grande pénétration.

D'autre part, les impulsions  $X$  obtenues sont périodiques et superposables, ce qui est beaucoup plus favorable pour l'observation à l'oscilloscope. L'utilisation des rayons  $X$  donne de plus la liberté de travailler avec une intensité variable. Il est possible ainsi d'obtenir un signal d'amplitude supérieure à ceux produits par les  $\beta$  ou les  $\gamma$  individuels, ce qui est essentiel par suite des difficultés de l'amplification fidèle d'impulsions si faibles et rapides.

Les signaux de déclenchement produits par le générateur ont une durée de 25 ou 50  $\mu\text{s}$ . La durée des éclairs de rayons  $X$  est certainement inférieure à ces valeurs. Les temps de transit des électrons variant de 0,5 à 2  $\mu\text{s}$ , il est légitime de négliger la durée de l'excitation.

Nous avons admis que tous les électrons atteignaient l'électrode collectrice, ce qui est réalisé à condition que le trappage soit suffisamment faible. En admettant<sup>15)</sup> une concentration de trappes de l'ordre de  $10^{13} \text{ cm}^{-3}$  et une section efficace de  $3 \cdot 10^{-15} \text{ cm}^2$ , on voit facilement que le « Schubweg » est de l'ordre de plusieurs centimètres. On doit donc s'attendre à observer des impulsions linéaires. Si tous les électrons étaient capturés par des trappes dont la densité est uniforme dans le cristal, l'impulsion aurait une allure du type  $1 - \exp(-t/\tau)$ .

## 2. Cristaux

Les cristaux utilisés proviennent de différentes sources. Le cristal AgBr N° 1 a été obtenu en refroidissant lentement la substance fondue (10° par heure). Les autres cristaux de AgBr ont été aimablement mis à notre disposition par la maison Eastman Kodak Company\*). Les cristaux de AgCl ont été achetés auprès de maisons spécialisées dans leur production industrielle.

Tous les cristaux de AgBr testés ont donné un signal mesurable. Par contre, seuls 2 cristaux de AgCl ont pu être utilisés pour des mesures. Une vingtaine d'autres ont été examinés. Quelques-uns donnaient un signal trop faible pour permettre une précision suffisante, tandis que la plupart ne donnaient aucun signal. Certains cristaux fournissent une impulsion appréciable lorsqu'ils sont irradiés par les  $\gamma$  mais sont peu ou pas du tout sensibles aux rayons  $X$ .

---

\*) Nous tenons à exprimer nos vifs remerciements au Dr F. URBACH pour son amabilité.

La pénétration très faible des rayons  $X$  exige des surfaces aussi parfaites que possible du point de vue cristallographique. Les cristaux sont fréquemment polis sur du velours de soie imbibé d'une solution de cyanure de potassium. La plupart ont été soigneusement recuits de la manière suivante: la température est maintenue pendant 20 à 50 heures à environ 20 degrés au-dessous du point de fusion. Elle est ensuite abaissée à raison de 10 degrés par heure. Cependant, contrairement à ce que mentionnent certains auteurs, nous n'avons pas observé d'effet sensible et systématique sur le rendement.

Nous avons étudié la structure de quelques cristaux par rayons  $X$ , par la méthode du «back-scattering». Il est apparu que la surface, même après un polissage effectué en prenant de grandes précautions, n'est pas monocristalline. Cependant, une nouvelle analyse, après attaque du cristal par un solvant sans polissage mécanique, révèle une structure monocristalline. La structure mosaïque est cependant assez prononcée.

Plusieurs cristaux ont été analysés spectrographiquement. La concentration des impuretés est dans tous les cas à la limite de sensibilité spectroscopique ( $\sim 10^{-6}$ ) sauf pour des impuretés de bore qui apparaissent dans 3 cristaux ( $\lesssim 10^{-5}$ ) dont 2 ne sont pas compteurs.

### 3. *Porte cristal*

À la température ordinaire, les cristaux polaires sont caractérisés par une importante conduction ionique qui masque totalement la conduction électronique. Par conséquent, les mesures de mobilité par la méthode utilisée ici ne sont réalisables qu'à basse température. La limite supérieure se situe à environ 180° K. La limite inférieure accessible est déterminée par la température de l'azote liquide. Le domaine de température exploré s'étend donc sur une centaine de degrés.

Le porte cristal utilisé est représenté dans la figure 7. L'inertie thermique est telle que, une fois l'air liquide éliminé, la vitesse de réchauffement est d'environ 20°C par heure ce qui permet une série de mesures à des températures intermédiaires suffisamment constantes.

La partie anodique A du tube à rayons  $X$  pénètre dans la chambre à vide et l'anticathode se trouve en face du cristal C.

La pression maintenue dans l'enceinte est généralement comprise entre  $10^{-4}$  et  $10^{-5}$  mm Hg.

### 4. *Tube à rayons X*

L'émission pulsée de rayons  $X$  s'obtient en appliquant à la grille de commande G (fig. 8) des impulsions de 25 ou 50  $\mu$ s de durée et de 100 V d'amplitude, suffisante pour débloquent la grille polarisée à - 60 V. Leur fréquence de répétition est comprise entre 60 et 1000  $s^{-1}$ . Une feuille de

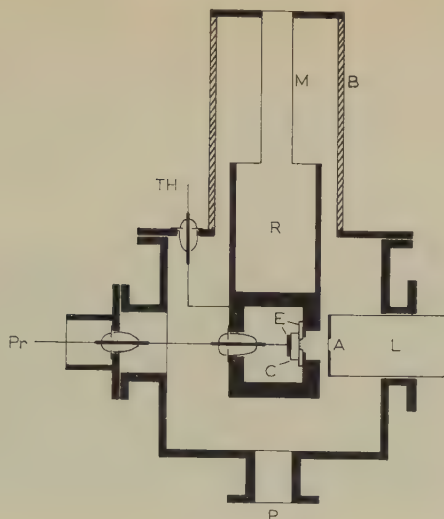


Fig. 7

Porte cristal

*E* = électrodes d'argent; *C* = cristal; *R* = réservoir à air liquide; *M* = tube de maillechort; *B* = colonne isolante en plexiglas; *A* = anticathode du tube à rayons *X*; *L*; *TH* = thermocouple; *Pr* = connexion au préamplificateur; *P* = vers les pompes.

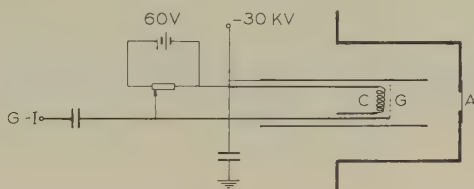


Fig. 8

Tube à rayons *X*

*A* = anticathode; *G* = grille de commande polarisée par une batterie de 60 V; *C* = cathode; *G-I* = sortie du générateur d'impulsions.

Cu de 17 microns d'épaisseur sert d'anticathode et laisse passer environ le 50% des rayons *X* pour l'irradiation du cristal.

L'intensité des rayons *X* a été contrôlée en comparant la luminescence qu'ils produisent dans un cristal d'anthracène à celle produite par les  $\gamma$  du  $\text{Co}^{60}$ . A émission maximum du tube, on obtient un rapport d'environ 50 entre l'amplitude des impulsions *X* et celle des impulsions  $\gamma$ . Par la mesure du «rise-time» des scintillations, nous avons pu vérifier que la durée des éclairs de rayons *X* est inférieure à celle des impulsions de commande du générateur.

### 5. *Préamplificateur*

L'électrode collectrice du porte cristal est reliée à la grille de commande du tube d'entrée du préamplificateur par une connexion coaxiale. L'amplitude de l'impulsion de tension est inversement proportionnelle à la capacité d'entrée; il est donc nécessaire de rendre cette dernière aussi petite que possible. Le préamplificateur est fixé directement sur le porte cristal pour diminuer la longueur du fil de connexion.

Les charges libérées étant de l'ordre de  $10^{-15}$  C, les impulsions de tension à amplifier ont des amplitudes voisines du mV. Il est de première importance que le préamplificateur soit à bruit minimum.

D'autre part, le temps de transit des électrons correspond au temps de montée de l'impulsion. Cette dernière doit être amplifiée sans déformations. Les temps de montée mesurés s'échelonnent de 0,3 à 1  $\mu$ s. Le rise-time du système amplificateur doit donc être suffisamment inférieur à ces valeurs. Le préamplificateur utilisé contient un premier étage monté en cascode et une boucle de contre-réaction. Ses caractéristiques sont les suivantes: amplification = 20 fois; bruit ramené à l'entrée = 100  $\mu$ V; rise-time = 0,03  $\mu$ s. Le préamplificateur attaque directement l'entrée d'un oscilloscope Tektronix type 541. Le rise-time de l'unité d'amplification (type 53/54 L) est de 0,014  $\mu$ s. Nous sommes ainsi assurés que les temps mesurés sur l'écran de l'oscilloscope correspondent bien aux temps de montée des impulsions à l'entrée.

## IV. Observations et résultats

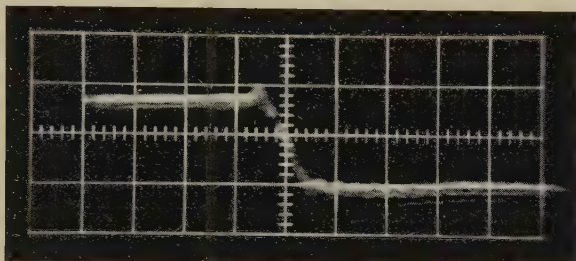
Avant d'être introduits dans le porte cristal, les cristaux sont soigneusement lavés à l'eau distillée, de manière à éviter toute décharge en surface. Ils reçoivent ensuite une électrode sur la face non irradiée, sous forme d'une couche mince de peinture à base d'argent utilisée dans la préparation des circuits imprimés. Cette électrode, adhérant parfaitement au cristal, assure le contact avec l'électrode collectrice, et d'autre part garantit l'homogénéité du champ électrique. Nous avons renoncé à une telle électrode sur la face irradiée, pour limiter au maximum l'absorption des rayons X, après nous être assurés que son absence n'avait pas d'influence sur les mesures.

Le refroidissement des cristaux est effectué généralement en trois à quatre heures et d'une manière continue, ceci pour éviter des tensions dues à de brusques variations de température. Le cristal est ensuite maintenu pendant une à deux heures à la température de l'air liquide. Les mesures sont effectuées lors du réchauffement; la durée de chaque mesure est d'environ 10 s.

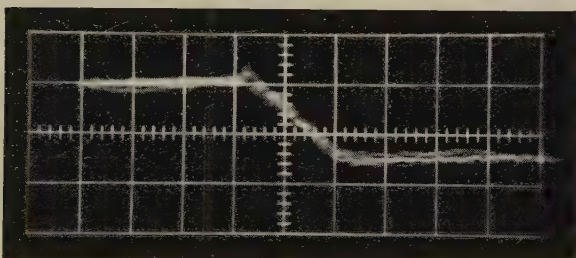
Le champ appliqué au cristal varie de 2500 à 6500 Vcm<sup>-1</sup> suivant les cas. Nous avons contrôlé que dans ce domaine, la proportionnalité entre

l'inverse  $1/t^*$  du temps de montée de l'impulsion et le champ  $E$  était vérifiée. Le nombre de séries de mesures pour chaque cristal est de 3 à 8. Entre les séries de mesures, les cristaux ont été polis ou même quelques-fois recuits. On verra plus loin que ces traitements n'altèrent pas la cohérence des résultats entre les différentes séries.

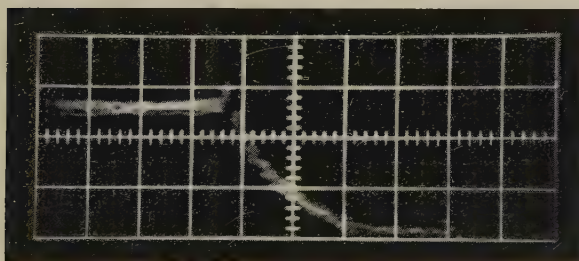
La figure 9 a et b montre deux impulsions caractéristiques. La variation du temps de montée avec la température est bien mise en évidence.



a



b



c

Fig. 9

Impulsions de conduction (temps de balayage:  $0,5 \mu\text{s cm}^{-1}$ ).

a = AgBr N° 1,  $T = 112^\circ\text{K}$ ; b = AgBr N° 1,  $T = 172^\circ\text{K}$ ; c = impulsion non linéaire caractéristique d'un fort trappage.



On remarquera également la linéarité des impulsions qui confirme un trappage peu important des électrons. Les coudes parfaitement marqués aux extrémités des impulsions indiquent également que la quasi-totalité des charges libérées atteignent l'électrode collectrice. La figure 9c reproduit une impulsion non linéaire, caractéristique d'un cristal avec fort trappage.

### *Effet de polarisation*

Nos mesures ont mis en évidence le phénomène suivant: si l'intensité des rayons  $X$  est augmentée, l'amplitude de l'impulsion de conduction croît jusqu'à une certaine limite, puis elle décroît rapidement et disparaît totalement. Dans certains cas, l'impulsion réapparaît une ou deux heures après l'arrêt de l'irradiation mais, généralement, il est nécessaire de ramener le cristal à la température ordinaire pour restaurer l'état initial. Cette intensité critique des rayons  $X$  peut varier suivant le cristal d'un facteur 5 à 10. Ce phénomène est très probablement dû à un effet de polarisation.

NEWTON<sup>16)</sup> a étudié les effets de charge d'espace dans le diamant. Cependant, il considère un cristal homogène avec une densité de trappes constante. Dans ces conditions, la recombinaison électrons-trous et le trappage d'électrons sont négligeables dans la région superficielle irradiée. Nous pensons que dans notre cas, la recombinaison et le trappage sont au contraire beaucoup plus importants dans une zone superficielle fortement perturbée que dans le volume du cristal. Nous en donnons pour preuve le fait que la sensibilité du cristal aux  $\gamma$  n'est pas altérée malgré la disparition de l'impulsion due aux rayons  $X$ . ALLEMAND et ROSSEL<sup>15)</sup> ont déjà mis en évidence un phénomène semblable.

On peut estimer la grandeur de l'effet de la façon suivante: on admet l'existence, à une profondeur  $a$ , d'une barrière de trappes à électrons portant une densité de surface  $\sigma$  de charge capturée. Un simple calcul d'électrostatique montre que dans l'épaisseur  $a$  du cristal, le champ prend la valeur:

$$E_a = V_0/d - (4\pi\sigma/\epsilon) \cdot (1 - a/d).$$

Puisque seule une zone superficielle peut être fortement polarisée, on aura  $a/d \ll 1$ . Il suffit dès lors d'une densité d'environ  $2 \cdot 10^{10}$  électrons par  $\text{cm}^2$  pour produire un champ de  $3 \cdot 10^3 \text{ V cm}^{-1}$ , annulant le champ  $E_0$  extérieur. Ceci suffit à expliquer la disparition de l'impulsion pour les intensités d'irradiation utilisées.

Il n'est donc pas possible d'améliorer le rapport signal sur bruit de nos impulsions par augmentation de l'intensité d'irradiation au-delà d'une certaine limite. Lors de nos mesures, nous avons toujours maintenu l'intensité du rayonnement nettement en dessous de la valeur critique, en

nous assurant que la forme de l'impulsion (amplitude et temps de montée) n'était pas affectée par une irradiation même prolongée.

Nous donnons sur la figure 10 les résultats de 6 différentes séries de mesures se rapportant au cristal AgBr N° 1. Nous avons porté la mobilité en fonction de la température pour mettre en évidence d'une part l'allure

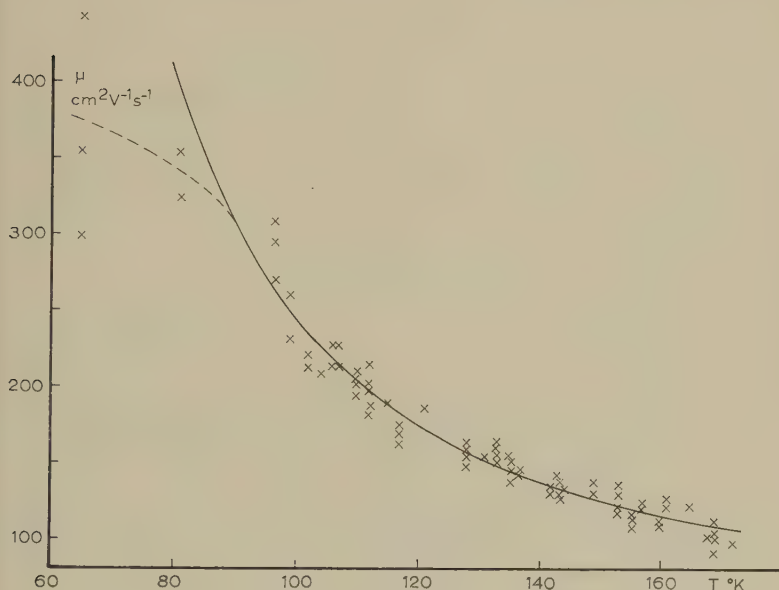


Fig. 10  
Mobilité dans AgBr N° 1

de la courbe, et d'autre part la reproductibilité des points correspondant aux différentes séries. Les erreurs affectant les points de mesure ne sont pas reproduites pour ne pas charger le dessin. Elles sont de 1 à 2% sur la température et de 5 à 10% sur la mobilité. On remarquera que vers les basses températures (où les erreurs affectant la mobilité sont plus grandes et atteignent 20%) la courbe ne suit plus la forme exponentielle. L'influence des impuretés ionisées semble devenir importante, sans toutefois être prédominante.

Cette influence est par contre très nette et beaucoup plus importante dans le cas du cristal AgCl N° 1 (fig. 11) où on observe un maximum de la mobilité vers 110° K.

Sur les figures 12, 13, 14, 15 et 16, nous avons porté le logarithme de la mobilité en fonction de l'invers de la température. Les figures se rapportent respectivement aux cristaux AgCl N° 1 et AgBr N° 1 à 4.

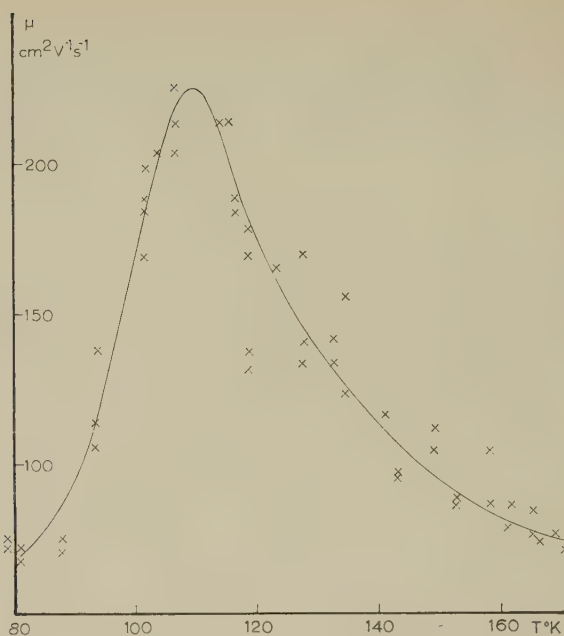


Fig. 11  
Mobilité dans AgCl N° 1

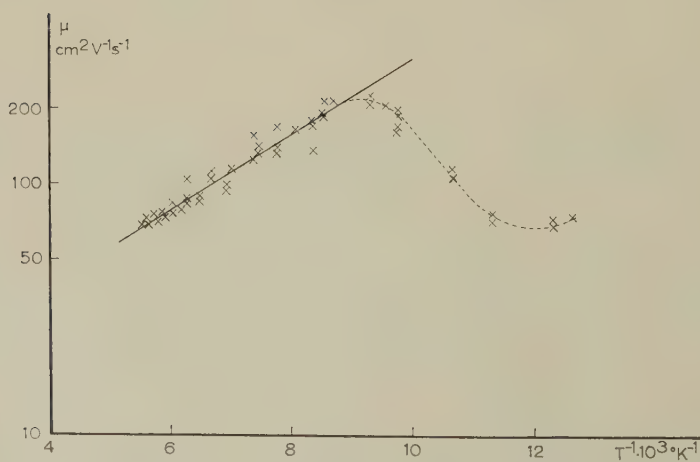


Fig. 12  
Mobilité dans AgCl N° 1

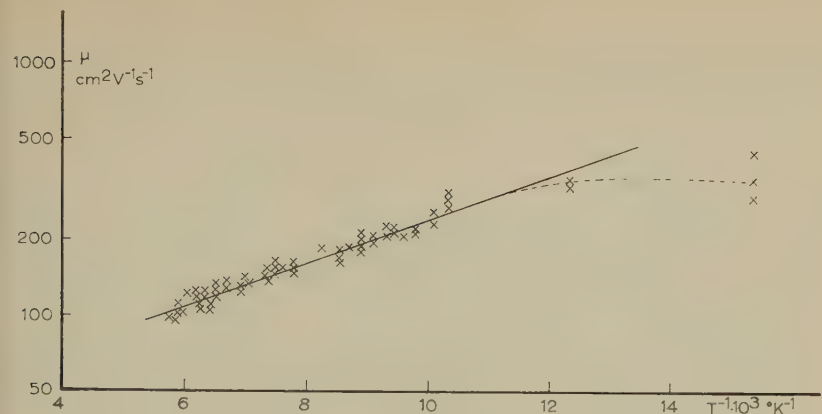


Fig. 13  
Mobilité dans AgBr N° 1

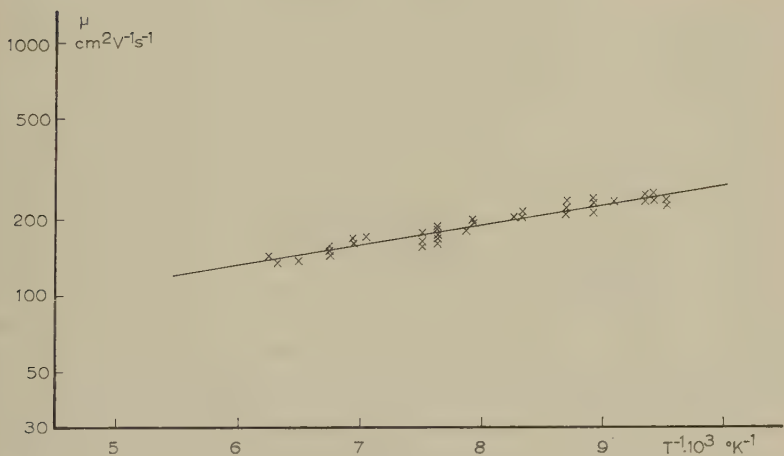


Fig. 14  
Mobilité dans AgBr N° 2

V. Discussion des résultats et comparaison avec les théories du polaron

1. Validité du  $\mu$  mesuré

Nous estimons que, dans le cas de AgBr tout au moins, la mobilité mesurée est bien la mobilité microscopique et qu'il n'y a pas lieu de tenir compte d'un effet de «multiple trapping» comme l'indiquent KOBAYASHI et BROWN<sup>17</sup>). Les constatations suivantes appuient notre point de vue:

a) Les valeurs de la mobilité obtenues pour différents cristaux sont cohérentes. Les cristaux étant de provenances très différentes, il est pro-

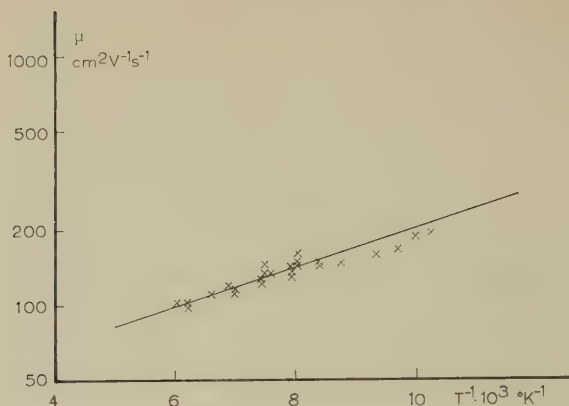


Fig. 15

Mobilité dans AgBr N° 3

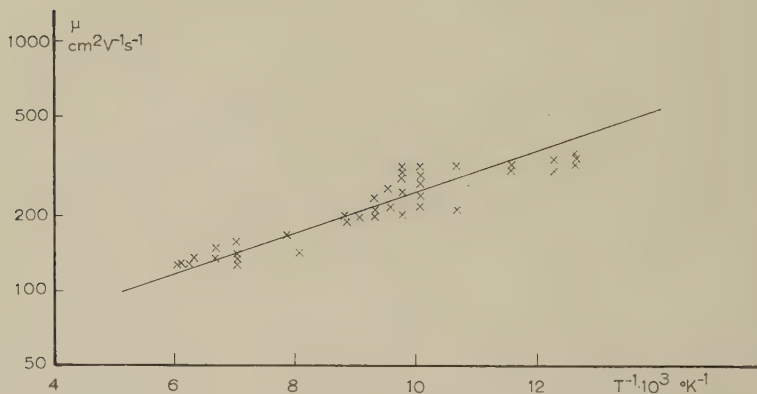


Fig. 16

Mobilité dans AgBr N° 4

bable que la concentration des trappes varierait fortement de l'un à l'autre, ce qui se manifesterait par une dispersion plus grande pour la mobilité.

b) Les impulsions observées sont linéaires. Un trappage prononcé se manifesterait par une courbure du front d'impulsion (fig. 9c). Ceci exclut la présence de trappes profondes.

c) Un «multiple trapping» par trappes peu profondes aurait pour effet d'étaler le groupe de charges en mouvement. Le décrochement très net par lequel se terminent nos impulsions est incompatible avec une telle dispersion des électrons dans leur mouvement.



## 2. *Domaine expérimental de température et validité des hypothèses théoriques*

Les expressions théoriques de la mobilité sont valables à condition que  $\hbar/\tau \ll kT$  où  $\tau$  représente l'intervalle de temps entre deux collisions.  $\tau$  est lié à la mobilité par la relation  $\mu = (e/m^*) \tau$ . Pour une masse du polaron égale à  $0,3 m_e$  et une mobilité de  $100 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1}\text{s}^{-1}$  correspondant à une température  $T = 150^\circ \text{ K}$ ,  $\hbar/\tau \simeq 5 \cdot 10^{-14} \text{ erg}$  devient du même ordre de grandeur que  $kT^*$ ). La mobilité croissant exponentiellement lorsque la température diminue, la condition sera parfaitement satisfaite aux très basses températures. Il n'est pourtant pas possible d'effectuer les mesures au-dessous d'une certaine limite, car la mobilité est alors déterminée par la diffusion de l'électron sur les impuretés; la température critique au-dessous de laquelle l'influence des impuretés est prédominante se situe, suivant les cristaux, entre  $70$  et  $100^\circ \text{ K}$ . Nos mesures sont donc effectuées dans un domaine de température situé à l'intérieur des limites de validité des expressions théoriques.

D'autre part, l'expression de la mobilité est surtout valable pour  $T \ll \theta$ , ce qui permettrait de négliger le terme  $-1$  dans le facteur  $(e^{\theta/T} - 1)$  caractérisant la statistique des phonons. La valeur prévue de  $\theta$  étant voisine de  $200$  pour AgBr, le fait de négliger  $-1$  par rapport à l'exponentielle entraîne dans notre domaine de mesure des erreurs variant de  $10$  à  $25\%$ .

La théorie du polaron conduit à une loi exponentielle pour la mobilité. Un des points essentiels de cette théorie est le fait de considérer l'interaction de l'électron avec la branche optique des vibrations du réseau comme prédominante. L'interaction de l'électron avec la branche acoustique conduit pour la mobilité à une loi en  $T^{-3/2}$  ce qui est le cas pour les cristaux de valence à l'approximation d'une surface d'énergie sphérique. Comme nous le verrons ci-dessous, nos résultats expérimentaux donnent une probabilité nettement plus grande pour une courbe exponentielle que pour une courbe du type  $T^{-3/2}$ .

Il faut remarquer que la grandeur  $\theta$  qui intervient dans le facteur exponentiel a un caractère purement statistique, et qu'elle pourrait ne pas coïncider avec  $\hbar\omega_l/k$ ,  $\omega_l$  étant une grandeur dynamique caractéristique du cristal. Rigoureusement ce  $\theta$  statistique n'a pas nécessairement une valeur fixe; il est susceptible de varier suivant l'intervalle de température envisagé. Les valeurs de  $\theta$  déduites de nos résultats expérimentaux sont en bon accord avec la valeur  $\hbar\omega_l/k$  déduite des propriétés optiques. Il n'y aura donc pas lieu dans notre travail de faire une distinction entre les valeurs statistique et dynamique de  $\theta$ . Ceci signifie qu'on peut, en bonne approximation, faire intervenir dans la statistique des phonons la seule fréquence  $\omega(k=0)$ .

\*) Comparer note en page 631.

Les deux points ci-dessus constituent des arguments en faveur des hypothèses sur lesquelles se fonde le modèle du polaron et nous autorisent à analyser nos résultats sur la base des théories construites sur ce modèle.

### 3. Comparaison des résultats avec la théorie

#### A. Théorie de Low et PINES

Nous avons fait une première analyse des résultats en admettant une exponentielle du type  $\mu = Ae^{\theta/T}$ . Bien que les valeurs que nous déduirons ne soient qu'indicatives, par le fait que nous négligeons  $-1$  devant l'exponentielle, nous avons jugé cette analyse utile. Il est en effet possible de déterminer les coefficients de l'exponentielle par un calcul de moindres carrés qui tient compte de la dispersion des points de mesure et donne les erreurs affectant les coefficients.

Le facteur  $A$  dépend de  $m$ ,  $m^*$ ,  $\alpha$  et  $\theta$ .  $\alpha$  et  $m^*$  sont eux-mêmes fonctions de  $m$ . Il est ainsi possible d'exprimer  $A$  en fonction de  $m$  et  $\theta$ . Nous pouvons dès lors représenter  $\ln \mu$  en fonction de  $1/T$ . Les figures 12, 13, 14, 15 et 16 montrent que, dans cette représentation, les points de mesure correspondant aux températures les plus élevées s'alignent autour d'une droite. La pente de cette droite, calculée par les moindres carrés, donne la valeur de  $\theta$ . Celle-ci étant connue, nous pouvons calculer la valeur de la masse effective  $m$  de l'électron à partir de l'ordonnée à l'origine et ensuite les valeurs de  $\alpha$  et  $m^*$ .

Les propriétés diélectriques et optiques caractéristiques des cristaux AgCl et AgBr sont reproduites dans le tableau I.

Tableau I

	$\epsilon$	$n^2$	$\omega_r(s^{-1})$	$\omega_l(s^{-1})$	$\theta(^{\circ}K) = \frac{\hbar\omega_l}{k}$
AgCl	12,3	4,01	$2,00 \cdot 10^{13}$	$3,50 \cdot 10^{13}$	267
AgBr	13,1	4,62	$1,52 \cdot 10^{13}$	$2,55 \cdot 10^{13}$	195

Les mobilités peuvent alors être mises sous une forme dépendant essentiellement des deux seuls paramètres  $\theta$  et  $\beta = m/m_e$ :

$$\text{AgCl: } \mu_r = f(\alpha) \frac{10^2}{\theta^{1/2}} \frac{1}{\beta^{3/2} \left(1 + 11,2 \frac{\beta^{1/2}}{\theta^{1/2}}\right)^3} e^{\theta/T} \text{ (cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}\text{)}$$

$$\text{AgBr: } \mu_r = f(\alpha) \frac{1,20 \cdot 10^2}{\theta^{1/2}} \frac{1}{\beta^{3/2} \left(1 + 9,30 \frac{\beta^{1/2}}{\theta^{1/2}}\right)^3} e^{\theta/T} \text{ (cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}\text{)}$$

où  $f(\alpha) \approx 1,1$ .

Nous n'indiquerons que les valeurs de  $\theta$  obtenues pour les différents cristaux par le procédé de calcul indiqué plus haut (tableau II).

Tableau II

	$\theta$ °K
AgCl N° 1	$346 \pm 14$
(AgCl N° 2	$247 \pm 29$ )
AgBr N° 1	$201 \pm 6$
AgBr N° 2	$183 \pm 12$
AgBr N° 3	$182 \pm 15$
AgBr N° 4	$188 \pm 14$

Le résultat se rapportant au cristal AgCl N° 2 doit être considéré comme une indication seulement. Le signal observé était faible et l'impulsion n'était pas linéaire, de sorte que son temps de montée est mal défini.

Pour plusieurs de nos cristaux, nous avons adapté une courbe en  $T^{-3/2}$  aux points expérimentaux. Les coefficients de cette courbe, calculés par les moindres carrés, sont affectés d'une erreur deux fois plus grande que celle obtenue pour les coefficients de l'exponentielle. La probabilité d'une loi exponentielle pour la mobilité apparaît donc nettement plus grande que celle d'une loi en  $T^{-3/2}$ .

L'analyse des résultats expérimentaux sur la base d'une loi du type  $\mu = A (e^{\theta/T} - 1)$  ne peut pas se faire d'une manière simple par la méthode des moindres carrés. Nous avons alors porté graphiquement  $\ln(\mu/A_0)$  en fonction de  $\ln(\theta_0/T)$  où  $A_0$  et  $\theta_0$  sont des constantes voisines des valeurs attendues pour  $A$  et  $\theta$  (fig. 17). Nous avons calculé la courbe  $y = e^x - 1$  et construit la représentation de  $\ln y$  en fonction de  $\ln x$ . Les points expérimentaux doivent pouvoir être ajustés sur la courbe calculée. Le déplacement vertical des coordonnées donne  $\ln(A/A_0)$  et le déplacement horizontal  $\ln(\theta/\theta_0)$ .

Dans une première approximation,  $\theta$  est déterminé en ne considérant que les points correspondant aux températures les plus élevées. Nous admettons ensuite que seules les impuretés ionisées interviennent dans un terme correctif du type  $B \cdot T^{3/2}$  et nous calculons ce terme correctif sur la base des points précédant immédiatement le maximum. La courbe expérimentale est alors corrigée et  $A$  et  $\theta$  sont déterminés dans une seconde approximation. Nous avons constaté qu'il était possible de varier l'exposant de  $T$  dans le terme correctif entre 1,2 et 1,7 sans que les résultats soient modifiés de plus de 1 à 2%.

$A$  et  $\theta$  étant connus, nous pouvons déterminer successivement  $m$ ,  $\alpha$  et  $m^*$ . Les valeurs obtenues sont données dans le tableau III. Les erreurs affectant ces valeurs ne pouvant pas se calculer, nous admettrons qu'elles

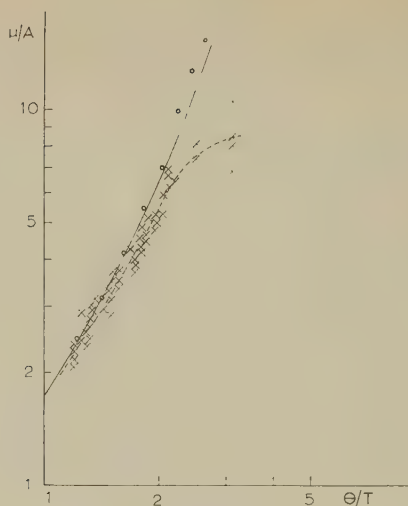


Fig. 17

Cristal AgBr N° 1

La mobilité est portée en fonction de l'inverse de la température.

- x Points expérimentaux.  
 - - - Courbe expérimentale; o = Points corrigés.  
 — Courbe théorique. (Seuls les points expérimentaux ayant une précision suffisante sont pris en considération.)

sont identiques à celles obtenues par le calcul des moindres carrés qui tenait compte de la dispersion des points expérimentaux. La dernière colonne indique le rapport  $m^*/m_e$  mesuré par BROWN et DART<sup>18)</sup> et KOBAYASHI et BROWN<sup>17)</sup>.

Tableau III

	$\theta$ ° K	$\alpha$	$m/m_e$	$m^*/m_e$	$m^*/m$	$m^*/m_e$
AgCl N° 1	$350 \pm 15$	2,13	0,35	0,47	1,34	$\left. \begin{array}{l} 0,28^{18)} \\ 0,40^{17)} \end{array} \right\}$
(AgCl N° 2	$250 \pm 30$	1,50	0,10	0,15	1,50)	
AgBr N° 1	$210 \pm 6$	1,77	0,21	0,27	1,29	
AgBr N° 2	$191 \pm 12$	1,66	0,17	0,22	1,30	
AgBr N° 3	$200 \pm 15$	1,76	0,20	0,26	1,30	
AgBr N° 4	$167 \pm 14$	1,73	0,16	0,21	1,31	

On constate en comparant avec le tableau II que les valeurs obtenues pour  $\theta$  ne sont pas modifiées de façon significative.

Dans le cas de AgCl, les résultats ne sont pas très cohérents. Pour le cristal N° 1, l'écart entre notre valeur de  $\theta$  et la valeur semi-théorique est de 30%. Cependant, les valeurs obtenues pour le cristal N° 2, bien que

n'ayant que le caractère d'une estimation, laissent supposer qu'on doit s'attendre à obtenir en moyenne des valeurs plus correctes.

Dans le cas de AgBr par contre, les valeurs obtenues pour  $\theta$  sont en bon accord avec la valeur semi-théorique. Ce fait confirme une interaction de l'électron avec la branche optique et fournit une justification du modèle du polaron.

Dans le cas du cristal AgCl N° 1, nous avons essayé d'adapter une courbe en  $T^{3/2}$  à la partie basse température de nos résultats. Il n'est pas possible d'obtenir un accord satisfaisant entre les courbes théorique et expérimentale. L'exposant devrait être nettement plus grand que  $3/2$ . Cependant, l'imprécision des mesures dans ce domaine ne permet pas de faire une analyse quantitative des résultats. Nous pouvons néanmoins supposer que, d'une part, les impuretés neutres et les dislocations n'ont pas une influence négligeable dans ce domaine de température. D'autre part, on pourrait mieux rendre compte de l'allure de la courbe expérimentale aux très basses températures (fig. 11 et 12) par la théorie de BLATT<sup>10</sup>) pour la diffusion par les impuretés ionisées.

## B. Théorie de FEYNMAN-SCHULTZ

La comparaison des résultats expérimentaux avec la théorie de FEYNMAN-SCHULTZ se fait le plus aisément en exprimant la mobilité sous la forme :

$$\mu_r = \frac{e^5}{4 \hbar \hbar^2} \left( \frac{1}{n^2} - \frac{1}{\varepsilon} \right) \frac{m}{m^*} \frac{1}{\theta^2} \frac{F(\alpha)}{\alpha^2} (e^{\theta/T} - 1)$$

$$\text{où} \quad F(\alpha) = \frac{v_r / (2 \hbar \omega / m)^{1/2}}{\alpha Z_r}$$

Dans le domaine des valeurs de  $\alpha$  caractéristiques des cristaux étudiés, soit  $1,5 \lesssim \alpha \lesssim 5$ , la fonction  $F(\alpha)$ , obtenue par interpolation des valeurs numériques de SCHULTZ, est représentée avec une erreur ne dépassant pas 1% par l'expression :

$$(1 + 0,525 \alpha) / (\alpha - 0,0532 \alpha^2 - 0,0116 \alpha^3)$$

On constate en particulier qu'elle reste comprise entre 1,17 et 1,24 pour  $1,5 \leq \alpha \leq 4$ . Elle peut donc être considérée, à une approximation suffisante, comme constante et égale à 1,20.

D'autre part,  $m^*/m$  est donné à mieux de 2% pour le domaine  $1,5 \leq \alpha \leq 4$  par le polynôme

$$m^*/m = 1 + \alpha/6 + 0,025 \alpha^2 + 0,004 \alpha^3$$

qui est l'expression indiquée par FEYNMAN avec l'adjonction d'un terme en  $\alpha^3$  pour l'adapter aux résultats de SCHULTZ obtenus par calculatrice électronique.



Ainsi,  $\mu_r$  s'exprimera au moyen des deux seuls paramètres  $\theta$  et  $\alpha$  par l'expression numérique suivante :

$$\mu_r = 1,07 \cdot 10^5 \left( \frac{1}{n^2} - \frac{1}{\varepsilon} \right) \frac{m}{m^*} \frac{10^4}{\theta^2} \frac{F(\alpha)}{\alpha^2} (e^{\theta/T} - 1) \text{ (cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}\text{)}$$

c'est-à-dire

$$\mu_r = 3,37 \cdot 10^3 \left( \frac{m}{m^*} \frac{1}{\alpha^2} \right) \frac{10^4}{\theta^2} (e^{\theta/T} - 1) \text{ pour AgCl}$$

$$\mu_r = 2,35 \cdot 10^3 \left( \frac{m}{m^*} \frac{1}{\alpha^2} \right) \frac{10^4}{\theta^2} (e^{\theta/T} - 1) \text{ pour AgBr}$$

On obtient dans ces conditions les résultats indiqués dans le tableau IV ci-dessous. (Les valeurs de  $\theta$  sont naturellement les mêmes que celles du tableau III.)

Tableau IV

	$\alpha$	$m/m_e$	$m^*/m_e$	$m^*/m$
AgCl N° 1	3,43	0,85	1,58	1,96
(AgCl N° 2	2,17	0,26	0,39	1,50)
AgBr N° 1	2,75	0,51	0,85	1,67
AgBr N° 2	2,55	0,40	0,64	1,61
AgBr N° 3	2,77	0,49	0,83	1,69
AgBr N° 4	2,67	0,38	0,63	1,65

Il n'existe pas d'estimation théorique précise de la masse effective dans un réseau polaire. TIBBS<sup>19)</sup> dans son étude du centre  $F$  dans NaCl estime que  $m/m_e$  est voisin de 1.

Les travaux de PEKAR (voir réf. 2) (approximation quasi adiabatique) sur l'énergie de dissociation thermique des centres  $F$  dans les halogénures d'alcalins lui permettent de tirer  $m/m_e$  de la comparaison avec les valeurs expérimentales de cette énergie. Ses résultats sont compris entre 1,70 et 3,25 mais ne semblent pas pouvoir être retenus étant donnée la valeur relativement faible du coefficient de couplage  $\alpha$ .

Les résultats que nous avons obtenus sur la base des deux théories utilisées indiquent que  $m/m_e$  ne dépasse pas 0,5. Par contre les deux théories fournissent des valeurs nettement différentes pour la masse du polaron; d'une part de l'ordre de 0,20  $m_e$  d'autre part voisine de 0,75  $m_e$  soit une différence d'un facteur 4.

## VI. Conclusions

1. Nos expériences n'ont pas mis en évidence une conduction par trous positifs. Ces derniers ont vraisemblablement une masse effective très élevée. Il est en effet peu probable que la densité des trappes soit beaucoup plus grande pour les trous positifs que pour les électrons.

2. Pour tous les cristaux, il existe une zone superficielle fortement perturbée dans laquelle la densité des trappes est plus élevée que dans le volume du cristal. Ceci impose une limitation de l'intensité d'irradiation pour éviter la formation d'une charge d'espace importante, susceptible d'empêcher toute conduction.

3. Les cristaux de bromure d'argent semblent avoir une sensibilité pour la détection des radiations ionisantes nettement supérieure à celle des cristaux de chlorure.

4. L'influence de la diffusion de l'électron par des impuretés ionisées apparaît nettement et suffit à expliquer la décroissance de la mobilité aux basses températures ( $< 100^\circ \text{K}$ ); une loi en  $T^{3/2}$  paraît toutefois douteuse.

L'intervention d'un effet de «multiple trapping» nous semble exclue étant donnée la forme des impulsions observées.

5. Le modèle du polaron faisant intervenir une interaction de l'électron avec la seule branche optique des vibrations du réseau est confirmé.

6. Le domaine de température exploré n'est pas suffisamment étendu pour permettre l'étude d'une variation éventuelle du  $\theta$  statistique avec la température. Sur l'ensemble du domaine, ce  $\theta$  est en bon accord avec le  $\theta$  dynamique correspondant à la seule fréquence  $\omega(k=0)$ .

7. Les valeurs obtenues pour la masse du polaron paraissent raisonnables. Cependant, l'écart entre les valeurs déduites sur la base des expressions de LOW et PINES d'une part et de SCHULTZ d'autre part est considérable.

Dans le cas de  $\text{AgCl}$ , l'expression de LOW et PINES donne une masse  $m^*$  nettement inférieure à la masse  $m_e$ , tandis que celle de SCHULTZ donne une valeur de  $m^*$  supérieure à  $m_e$ .

Dans le cas de  $\text{AgBr}$ , les deux masses du polaron sont inférieures à la masse de l'électron libre bien que différentes d'un facteur 4 environ.

8. Notre étude expérimentale ne fournit pas de donnée susceptible d'appuyer l'une des théories en faveur de l'autre. Seule une détermination directe de la masse du polaron, par résonance cyclotron sur des cristaux très purs par exemple, donnerait une valeur indépendante des méthodes de calcul théoriques et servirait de test de validité pour celles-ci.

Nous remercions la Commission Suisse de la Science Atomique de son appui financier.

### Bibliographie

- <sup>1)</sup> G. R. ALLCOCK, Adv. Phys. 5, 412 (1956).
- <sup>2)</sup> H. HAKEN, Halbleiterprobleme II, W. Schottky, Ed. (1955).
- <sup>3)</sup> T. D. LEE, F. E. LOW et D. PINES, Phys. Rev. 90, 297 (1953).
- <sup>4)</sup> F. E. LOW et D. PINES, Phys. Rev. 98, 414 (1955).
- <sup>5)</sup> R. P. FEYNMAN, Phys. Rev. 97, 660 (1955).
- <sup>6)</sup> T. D. SCHULTZ, Phys. Rev. 116, 526 (1959).

- <sup>7)</sup> E. CONWELL et V. F. WEISSKOPF, *Phys. Rev.* **77**, 388 (1950).
- <sup>8)</sup> H. BROOKS, *Phys. Rev.* **83**, 879 (1951).
- <sup>9)</sup> P. P. DEBYE et E. CONWELL, *Phys. Rev.* **93**, 693 (1954).
- <sup>10)</sup> F. J. BLATT, *J. Phys. Chem. Solids* **1**, 262 (1956).
- <sup>11)</sup> C. ERGINSOY, *Phys. Rev.* **79**, 1013 (1950).
- <sup>12)</sup> J. BARDEEN et W. SHOCKLEY, *Phys. Rev.* **80**, 72 (1950).
- <sup>13)</sup> D. L. DEXTER et F. SEITZ, *Phys. Rev.* **86**, 964 (1952).
- <sup>14)</sup> L. CHOLLET et J. ROSSEL, *Helv. Phys. Acta* **32**, 476 (1959).
- <sup>15)</sup> C. ALLEMAND et J. ROSSEL, *Helv. Phys. Acta* **27**, 519 (1954).
- <sup>16)</sup> R. R. NEWTON, *Phys. Rev.* **75**, 234 (1949).
- <sup>17)</sup> K. KOBAYASHI et F. C. BROWN, *Phys. Rev.* **113**, 507 (1959).
- <sup>18)</sup> F. C. BROWN et F. E. DART, *Phys. Rev.* **108**, 281 (1957).
- <sup>19)</sup> S. R. TIBBS, *Trans. Faraday Soc.* **35**, 1471 (1939).

## Mineralien als Vorbilder für neue Halbleiterverbindungen

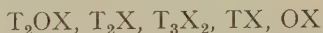
von G. Busch und F. Hulliger

Laboratorium für Festkörperphysik ETH, Zürich

*Zusammenfassung.* Neue Halbleiterverbindungen können durch Kombination von binären Halbleitern gewonnen werden, wobei jedoch die möglichen Mischungsverhältnisse meist erst experimentell ermittelt werden müssen. Einen Hinweis auf mögliche stöchiometrische Verhältnisse in ternären und quaternären Selenid- und Tellurid-Halbleitern geben uns die natürlichen nichtmetallischen Sulfomineralien. Ein teilweiser Ersatz der in den Mineralien auftretenden Elemente durch chemisch verwandte führt auf eine grosse Zahl neuer Halbleiter mit meist niedrigen Schmelzpunkten und Aktivierungsenergien von 0,1 bis 3 eV. Von einigen hochsymmetrischen Verbindungen wurden die Gitterkonstanten aus Pulverdiagrammen bestimmt.

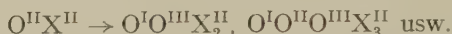
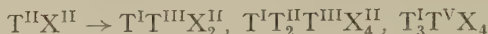
Fast alle natürlich vorkommenden Mineralien besitzen nichtmetallischen Charakter. Während Oxyde, Fluoride, Karbonate, Silikate usw. Isolatoren sind, weisen die Sulfomineralien Aktivierungsenergien auf, die meist unter 2,5 eV liegen. So ist es nicht verwunderlich, dass die für Halbleiter charakteristischen Leitfähigkeitskurven zuerst an Sulfomineralien<sup>1)</sup> gefunden wurden, obwohl man damals, als der Begriff Halbleiter<sup>2)</sup> vorgeschlagen wurde, noch keine Ahnung vom Leitungsmechanismus hatte. Diese frühen Arbeiten wurden entweder übersehen oder wieder vergessen; dies besonders als sich das Interesse mehr den Element-Halbleitern Ge, Si, Se, Te und den intermetallischen Verbindungen zuwandte. Inzwischen gewann man auch Einblick in die Aufbauprinzipien halbleitender Verbindungen<sup>3)</sup>. Die Kenntnis der Bedingungen, denen die Elektronenbindungen in Halbleiterverbindungen und damit die Elektronenkonfiguration der Komponenten und deren räumliche Anordnung zu genügen haben, erleichterten die Suche nach neuen Halbleitern. Da bei Verbindungen ohne Übergangselemente im allgemeinen nur *s*- und *p*-Elektronen an der Bindung beteiligt sind, kristallisieren die meisten der bekannten binären Halbleiterverbindungen in einfachen Kristallgittern mit Koordinationszahlen 4, 6 und 8. So lässt sich eine grosse Anzahl von Halbleitern auf ein kubisches oder hexagonales Anionengrundgitter (Anionen in den Punktlagen einer dichtesten Kugelpackung) aufbauen, dessen Tetraeder- oder Oktaederlücken teilweise oder vollständig durch Kationen besetzt werden. Bedingung ist dabei, dass durch die Gesamtzahl der

Valenzelektronen gerade die Edelgasschale der Anionen aufgefüllt, das heisst die chemischen Valenzregeln erfüllt werden. Symbolische Formeln solcher binärer Verbindungen lauten

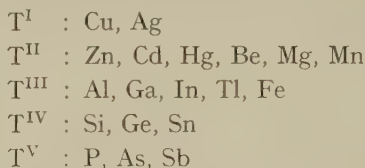


T = Kation in Tetraederlücke, O = Kation in Oktaederlücke,  
X = Anion in Lage A1 oder A3

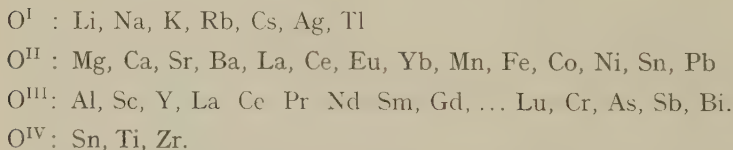
Von diesen einfachen Verbindungen gelangt man durch Substitution der T- oder O-Elemente zu ternären oder quaternären Verbindungen, z. B.



Für die Tetraederlücken kommen Elemente in Frage, die zur Bildung von  $sp^3$ -Bindungsfunktionen fähig sind, also:



Die Oktaederlücken können besetzt werden durch Elemente mit einer Valenzelektronenkonfiguration, welche die Ausbildung von  $d^2sp^3$ -, oder  $sp^3d^2$ -Hybridfunktionen erlaubt:



Als Anionen X treten praktisch alle Elemente rechts der Zintl-Grenze, also der 4. bis 7. Gruppe des periodischen Systems auf. Wie man sofort sieht, lassen sich auf diese Art die Formeln einer Menge bisher noch unbekannter Verbindungen angeben. Die Existenz solcher zunächst hypothetischer Verbindungen, wie zum Beispiel  $Cu_2NaAs$ ,  $KAlSe_2$ ,  $CuZn_2GaS_4$  usw. hängt allerdings noch von verschiedenen Faktoren (Radienverhältnisse, Elektronegativitätsunterschiede) ab und bleibt experimentell zu bestätigen. Da in vielen Elementen die Valenzelektronen in geometrisch verschiedenen Bindungszuständen auftreten können und ausserdem die beiden Grundgitter nicht die einzigen Möglichkeiten für die Kristallisation von Verbindungen mit abgesättigten Elektronenpaarbindungen darstellen, so kann man nur in einfachen Fällen das Gitter voraussagen.



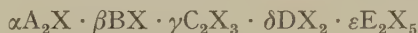
Verbindungen mit Zinkblende- oder Wurtzitstruktur zum Beispiel lassen sich aus den oben aufgeführten T-Elementen mit Kation:Anion-Verhältnissen 1:1 (bzw. 3:4 oder 2:3 für Zinkblende-ähnliche Strukturen) aufbauen, während bei Verwendung von O-Elementen die NaCl-Struktur erwartet werden kann. Bezeichnen wir mit A, B, C, D, E 1-, 2-, 3-, 4- bzw. 5wertige Kationen, mit X 2wertige und mit Y 3wertige Anionen, so lassen sich solche Verbindungen auf Grund folgender Formeln auffinden:

	Beispiel		Beispiel
ACX <sub>2</sub> :	CuGaSe <sub>2</sub> (T)	AD <sub>2</sub> Y <sub>3</sub> :	CuGe <sub>3</sub> As <sub>3</sub> (T)
	NaBiS <sub>2</sub> (O)	AEY <sub>2</sub> :	CuVP <sub>2</sub> (T)
A <sub>2</sub> DX <sub>3</sub> :	Cu <sub>2</sub> GeSe <sub>3</sub> (T)	BDY <sub>2</sub> :	ZnGeAs <sub>2</sub> (T)
A <sub>3</sub> EX <sub>4</sub> :	Cu <sub>3</sub> SbSe <sub>4</sub> (T)	B <sub>2</sub> EY <sub>3</sub> :	Cd <sub>3</sub> NbP <sub>3</sub> (T)
BC <sub>2</sub> X <sub>4</sub> :	CdIn <sub>2</sub> Te <sub>4</sub> (T)	ACD <sub>2</sub> Y <sub>4</sub> :	CuGaGe <sub>2</sub> P <sub>4</sub> (T)
B <sub>2</sub> DX <sub>4</sub> :	Zn <sub>2</sub> GeS <sub>4</sub> (T)	AC <sub>2</sub> EY <sub>4</sub> :	
ABCX <sub>3</sub> :	TlPbBiTe <sub>3</sub> (O)	BCDY <sub>3</sub> :	BaLaCeP <sub>3</sub> (O)
AB <sub>2</sub> CX <sub>4</sub> :	AgCd <sub>2</sub> InTe <sub>4</sub> (T)	BC <sub>2</sub> DY <sub>4</sub> :	CdIn <sub>2</sub> GeAs <sub>4</sub> (T)
A <sub>2</sub> BDX <sub>4</sub> :	Cu <sub>2</sub> FeSnS <sub>4</sub> (T)		
A <sub>4</sub> C <sub>3</sub> EX <sub>8</sub> :	Cu <sub>4</sub> Ga <sub>3</sub> AsS <sub>8</sub> (T)		

Stellt man keine Bedingungen in bezug auf die Struktur einer neuen Verbindung, so gelangt man auch zu neuen Halbleitern durch Kombination von binären Halbleitern mit nicht zu kleiner Aktivierungsenergie  $\Delta E$ , zum Beispiel



oder allgemeiner



Im allgemeinen werden die binären Verbindungen nicht beliebig miteinander mischbar sein. Welche Verhältniszahlen  $\alpha, \beta, \gamma$  zu einer echten neuen Verbindung führen, muss experimentell ermittelt werden. Kennt man aber einen Halbleiter mit bestimmtem Wertetrippl  $\alpha, \beta, \gamma$ , zum Beispiel ein Sulfid ( $X = S$ ) mit relativ hohem  $\Delta E$ , so besteht eine grosse Wahrscheinlichkeit, dass das Selenid und vielleicht auch das Tellurid (eventuell mit der gleichen Struktur) existieren und Halbleiter sind. Analogieschlüsse ausgehend von Sauerstoffverbindungen ( $X = O$ ) sind unsicherer, da in Phosphiten, Arseniten und Antimoniten wegen der grösseren Elektronegativitätsdifferenz der Partner die Bindung einen starken heteropolaren Anteil aufweist und durch die Radikalbildung andere geometrische Bedingungen geschaffen werden als in den Sulfoverbindungen. Während von den Oxyden nur die Ortho-, Pyro- und Metaverbindungen ( $\alpha:\gamma$ , bzw.  $\beta:\gamma = 3:1, 2:1, 1:1$ ) existieren, sind bei den

vorwiegend kovalenten Sulfoverbindungen noch andere Zusammensetzungen bekannt.

Es schien uns deshalb nützlich, einmal die bekannten ternären und quaternären Sulfomineralien zusammenzustellen, um einen Hinweis für mögliche Werte  $\alpha, \beta, \gamma, \delta, \varepsilon$  in entsprechenden Selenid- und Tellurid-Halbleitern zu erhalten.

Die meisten der als Halbleiter in Frage kommenden Sulfomineralien gehören zur Gruppe der Spießsglanze, die in den Tabellen 1, 2 und 3 zu-

Tabelle 1  
Kupfer- und Silberspiessglanze

Formel	C	As	Sb	Bi
$A_{24}C_2X_{15}$		[1]	[2]	
$A_9CX_6$		[1]	[1]	
$A_{16}C_2X_{11}$		{1}	{2}	
$A_5CX_4$		[1]	[3] [4]	
$A_3CX_3$	(1)	[5] <1>	(2) [6]	(3) [7]
$A_4C_2X_5$		[1] <1>		
$A_6C_4X_9$		(4) <1>		(5)
$ACX_2$		[8] <2>	(6) [9] [10]	(7) [11]
$A_2C_4X_7$			(8)	(9)
$AC_3X_5$		<3>		[12]
$A_2C_{12}X_{19}$			[13]	

#### Kupferspiessglanze

A = Cu, X = S

- (1) Tennantit (Fe-frei)
- (2) Tetraedrit (Zn-frei)
- (3) Wittichenit
- (4) Binnit
- (5) Klaprothit
- (6) Wolfsbergit
- (7) Emplektit
- (8) Guejarit
- (9) Dognácskait

#### Kupferhaltige Silberspiessglanze

- {1} Pearcit
- {2} Polybasit

#### Thalliumspiessglanze

- <1> synthetisch
- <2> Lorandit
- <3> Vrbait  $TlAs_2SbS_5$

#### Silberspiessglanze

A = Ag, X = S

- [1] synthetisch
- [2] Polyargyrit
- [3] Geokronit
- [4] Stephanit (Sprödglasserz)
- [5] Proustit (lichtes Rotgültigerz)/Xanthokon
- [6] Pyrargyrit (dunkles Rotgültigerz)/Pyrostilpnit (Feuerblende)
- [7] Tapalpit (S  $\rightarrow$  Te)
- [8] Smithit/Trechmannit
- [9] Miargyrit
- [10] Aramayoit
- [11]  $\alpha$ -Schapbachit
- [12] Pavonit
- [13] Bolivian

sammengestellt sind. Die leeren Felder bedeuten nicht unbedingt Nichtexistenz der betreffenden Verbindung. In vielen Fällen könnte diese wohl

Tabelle 2  
Bleispiessglanze

Formel	C	As	Sb	Bi
$B_6C_2X_9$			(1)	(2)
$B_9C_4X_{15}$		(3)		
$B_4C_2X_7$		(4)	(5)	(6)
$B_7C_4X_{13}$		(8)		
$B_3C_2X_6$		(9)	(10)	(11)
$B_5C_4X_{11}$			(13)	(14)
$B_9C_8X_{21}$			(15)	
$B_2C_2X_5$		(16)	(17)	(18)
$B_{11}C_{12}X_{29}$			(19)	
$B_3C_4X_9$		(20)	(21)	
$B_4C_6X_{13}$		(22)		
$B_5C_8X_{17}$			(23)	(24)
$B_7C_{12}X_{25}$			(25)	
$BC_2X_4$		(26)	(27)	(28)
$B_3C_8X_{15}$			(31)	(32)
$BC_4X_7$				(33)
$BC_6X_{10}$				(34)

- (1) Kilbrickenit

(2) Beegerit

(3) Gratonit

(4) Jordanit

(5) Geokronit

(6) Meneghinit

(7) Goongarit

(8) Lengenbachit

(9) Guitermanit

(10) Falkmanit

(11) Kobellit
- (12) Lillianit

(13) Boulangerit

(14) Bursait

(15) Semseyit

(16) Dufrenoyisit

(17) Jamesonit

(18) Cosalit

(19) Heteromorphit

(20) Baumhauerit

(21) Domingit

(22) Liveingit
- (23) Plagionit

(24) Wismutplagionit

(25) Robinsonit

(26) Skleroklas (Sartorit)

(27) Zinckenit

(28) Wismut-Jamesonit

(29) Galenobismutit

(30) Platynit (S → Se)

(31) Fülöppit

(32) Chiviatit

(33) Cannizarit (?)

(34) Ustarasit

synthetisch hergestellt werden. Auffallend ist die dichte Folge von Verbindungen unter den Bleispiessglanzen, die an eine Mischkristallreihe erinnert.

In vielen dieser Verbindungen lassen sich auch die Kationen durch verwandte Elemente ersetzen, zum Beispiel Pb durch Sn, As durch P und Ag durch Tl. Innerhalb dieser Verbindungsfamilie kommen also für A, B, C und X folgende Elemente in Frage:

- A: Cu, Ag, Tl
- B: Pb, Sn
- C: P, As, Sb, Bi
- X: S, Se, Te

Tabelle 3  
Doppelspiessglanze

Formel	C	As	Sb	Bi
ABCX <sub>3</sub>		(1)	(2) [1]	(3)
A <sub>2</sub> B C <sub>2</sub> X <sub>5</sub>				[2]
A <sub>3</sub> B <sub>2</sub> C <sub>3</sub> X <sub>8</sub>			[3]	
A <sub>4</sub> BC <sub>4</sub> X <sub>9</sub>				[4]
A <sub>2</sub> B <sub>x</sub> C <sub>2</sub> X <sub>4+x</sub>				[5]
A <sub>2</sub> B <sub>2</sub> C <sub>4</sub> X <sub>9</sub>				(4) (5) {1}
ABC <sub>3</sub> X <sub>6</sub>			[6]	(6)
A <sub>2</sub> B <sub>2</sub> C <sub>2n</sub> X <sub>3n+3</sub>				(7)
A <sub>2</sub> BC <sub>4</sub> X <sub>8</sub>				[7]
A <sub>4</sub> B <sub>6</sub> C <sub>10</sub> X <sub>23</sub>			[8]	
A <sub>2</sub> B <sub>5</sub> C <sub>6</sub> X <sub>15</sub>			[9]	
AB <sub>4</sub> C <sub>5</sub> X <sub>12</sub>			[10]	
A <sub>3</sub> B <sub>7</sub> C <sub>10</sub> X <sub>25</sub>			[11]	
AB <sub>3</sub> C <sub>5</sub> X <sub>10</sub>		[12]		
ABC <sub>5</sub> X <sub>9</sub>				(8)

*Kupferbleispiessglanze*

- (1) Seligmannit
- (2) Bournonit (Rädelerz)
- (3) Aikinit
- (4) Hammarit
- (5) Wittit (teilweise S → Se)
- (6) Lindströmit
- (7) Rezbanyit
- (8) Gladit

*Kupferhaltige Silberbleispiessglanze*

- {1} Benjaminit

*Silberbleispiessglanze*

- [1] Freieslebenit
- [2] Schapbachit
- [3] Diaphorit
- [4] Schirmerit
- [5] beliebige Mischkristalle
- [6] Andorit
- [7] Alaskait
- [8] Ramdohrit
- [9] Owyheerit
- [10] Fizelyit
- [11] Fizelyit (?)
- [12] Hutchinsonit

Von den Verbindungen ACX<sub>2</sub> sind die meisten (ausser mit C = P) bereits als Halbleiter bekannt<sup>4)</sup>. Tabelle 4 enthält eine Auswahl verwandter Halbleiter-Mineralien sowie einige synthetische Verbindungen, bei welchen ein Ersatz von S durch Se und eventuell Te ebenfalls auf neue Halbleiter führt.

Ein Ersatz von Cu durch Na oder K sowie von Pb durch Mg, Ca, ... ist zwar in speziellen Fällen möglich, ändert jedoch den Charakter der Verbindungen vollständig. Ihre chemische Beständigkeit nimmt stark ab; die meisten sind hygroskopisch und viele enthalten sogar Kristallwasser. Durch den heteropolaren Bindungsanteil wird die Aktivierungsenergie stark erhöht. Isolatoren oder Ionenleiter dieser Art sind:

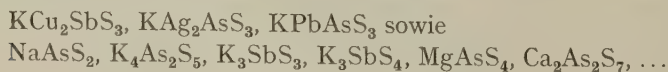
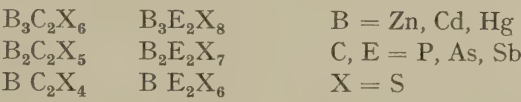


Tabelle 4

$BB'_xX_{1+x}$	$PbSnS_2$	Teallit
	$PbSn_4S_5$	Montesit
$BC_4X_7$	$HgSb_4S_7$	Livingstonit
$A_5CX_4$	$\alpha-Cu_5FeS_4$	Bornit
$A_8DX_6$	$Ag_8GeS_6$	Argyrodit
	$Ag_8(Sn, Ge)S_6$	Canfieldit
$A_3EX_4$	$Cu_3PS_4$	synthetisch
	$Cu_3AsS_4$	Enargit/Luzonit
	$Cu_3SbS_4$	Stibioenargit/Famatinit
	$Cu_3VS_4$	Sulvanit
	$Ag_3PS_4$	synthetisch
	$Ag_3AsS_4$	synthetisch
	$Ag_3SbS_4$	synthetisch
	$Tl_3PS_4$	synthetisch
	$Tl_3AsS_4$	synthetisch
	$Tl_3SbS_4$	synthetisch

Chemisch beständig sind jedoch Verbindungen, welche keine Alkali-, sondern nur B-Elemente enthalten:



Während bei den heteropolaren Alkaliverbindungen die Aktivierungsenergie für die Leitungselektronen so gross ist, dass die Elektronenleitung durch Ionenleitung überdeckt wird, liegt  $\Delta E$  bei den kovalenten hochschmelzenden Zn- und Cd-Verbindungen zwischen etwa 2,5 und 3,5 eV ( $Zn_3P_2S_8, Cd_3P_2S_8 \Delta E \geq 3,5 \text{ eV}$ ). Die Aktivierungsenergien der Hg-Verbindungen hingegen sind  $\leq 2,5 \text{ eV}$ ; auch schmelzen sie unterhalb 800°C, selbst zum Beispiel  $Hg_4P_2S_7$ .

Ein Ersatz von S durch Se und Te ist auch hier möglich. Es entstehen dadurch Verbindungen mit noch relativ hoher Aktivierungsenergie:  $Zn_3Sb_2Se_8 \Delta E > 2 \text{ eV}$ . Die Herstellung der Zn- und Cd-Verbindungen ist jedoch nicht so einfach, da selbst deren Verbindungen mit Sb und Te oberhalb 1100°C schmelzen. Kongruent schmelzende ternäre Verbindungen zwischen Hg, Sb und Te scheinen nicht zu existieren.

Jene Spiessglanze mit Cu, Ag, Tl, Hg, Pb und Sn, die sich nicht peritektisch bilden, lassen sich in evakuierten Quarzröhrchen aus den Elementen oder den binären Komponenten zusammenschmelzen. Viele der Sulfide bilden sich auch beim Erhitzen von  $As_2S_3$  oder  $Sb_2S_3$  mit den Schwermetallchloriden (zum Beispiel  $3 AgCl + Sb_2S_3 \rightarrow Ag_3SbS_3 + SbCl_3$ , wobei das  $AsCl_3$  bzw.  $SbCl_3$  wegsublimiert), oder durch Umsetzen einer  $Na_3SbS_3$ -Lösung mit einer entsprechenden Schwermetallsalzlösung.



Zur Prüfung, ob unser Vorschlag für die Herstellung neuer Halbleiter auch sinnvoll sei, griffen wir von den zahlreichen möglichen Verbindungen einige heraus. Es zeigte sich, dass sich die Analogie weitgehend auch auf den Schmelzvorgang erstreckt. Kongruent schmelzen nur stöchiometrisch einfach zusammengesetzte Selenide und Telluride, die von unzersetzt schmelzenden Sulfiden abgeleitet sind, zum Beispiel  $\text{AgPSe}_2$ ,  $\text{Ag}_3\text{SbSe}_3$ ,  $\text{Cu}_3\text{PSe}_4$ . Der Schmelzpunkt liegt bei der Mehrzahl der untersuchten Verbindungen zwischen  $350^\circ$  und  $800^\circ\text{C}$ , bei einigen Tl-Verbindungen noch tiefer. Die neuen Verbindungen wurden durch Schlibbilder und Röntgenaufnahmen auf Einphasigkeit geprüft. Auf den Existenznachweis der peritektisch entstehenden Verbindungen wurde verzichtet, da bei den niedrigen peritektischen Temperaturen die Umwandlung sehr langsam verlaufen kann.

Man wird nicht erwarten können, dass zum Beispiel bei einem Ersatz von Bi und S durch P und Te die Struktur erhalten bleibt. Hingegen wird beim Übergang von S zu Se und Te die Symmetrie bei einigen Schwermetallverbindungen erhöht. Die grösstmögliche Symmetrie tritt natürlich auf bei jenen Verbindungen mit einfachsten Kation:Kation- und Kationen:Anion-Verhältnissen, deren Kationen die geringsten Gröszenunterschiede aufweisen. Solche Verbindungen kristallisieren dann zum Teil wirklich in einem Anionengrundgitter. Von einigen dieser Verbindungen bestimmten wir aus Pulveraufnahmen die Gitterkonstante (22 bis  $24^\circ\text{C}$ ).

PbS-Typ:

$\text{AgGeSbSe}_3$	$a = 5,740 \pm 0,002 \text{ \AA}$
$\text{AgSnSbSe}_3$	$a = 5,855 \pm 0,002 \text{ \AA}$
$\text{AgSnBiSe}_3$	$a = 5,885 \pm 0,003 \text{ \AA}$
$\text{AgPbBiSe}_3$	$a = 5,937 \pm 0,002 \text{ \AA}$
$\text{AgPbBiTe}_3$	$a = 6,263 \pm 0,002 \text{ \AA}$
$\text{TlPbBiSe}_3$	$a = 6,141 \pm 0,002 \text{ \AA}$
$\text{TlPbBiTe}_3$	$a = 6,469 \pm 0,003 \text{ \AA}$
$\text{Ag}_2\text{SnSb}_2\text{Te}_5$	$a = 6,131 \pm 0,003 \text{ \AA}$
$\text{Ag}_3\text{Pb}_2\text{Sb}_3\text{Se}_8$	$a = 5,889 \pm 0,002 \text{ \AA}$
$\text{TlPb}_2\text{BiSe}_4$	$a = 6,137 \pm 0,003 \text{ \AA}$
$\text{TlPb}_4\text{BiTe}_6$	$a = 6,465 \pm 0,003 \text{ \AA}$

Die entsprechenden Kupferverbindungen besitzen niedrigere Symmetrie.

$\text{Cu}_3\text{AsSe}_4$  und  $\text{Cu}_3\text{SbSe}_4$  sind tetragonal und, wie die Sulfide, Beispiele für tetraedrische  $\text{A}_3\text{EX}_4$ -Verbindungen, deren Struktur vom Zinkblendegitter abgeleitet werden kann.

$$\begin{aligned}\text{Cu}_3\text{AsSe}_4 \quad a &= 5,570 \pm 0,003 \text{ \AA} \\ c &= 10,957 \pm 0,005 \text{ \AA}\end{aligned}$$

$$\text{Cu}_3\text{As}_{1/2}\text{Sb}_{1/2}\text{Se}_4 \quad a = 5,612 \pm 0,003 \text{ \AA} \\ c = 11,116 \pm 0,005 \text{ \AA}$$

$$\text{Cu}_3\text{SbSe}_4 \quad a = 5,654 \pm 0,003 \text{ \AA} \\ c = 11,256 \pm 0,005 \text{ \AA}$$

$\text{Cu}_3\text{VSe}_4$  ist isomorph mit Sulvanit,

$$a = 5,569 \pm 0,002 \text{ \AA}$$

Im allgemeinen jedoch besitzen diese ternären und quaternären Verbindungen niedrigere Symmetrie, was mit der Elektronenkonfiguration der C-Elemente zusammenhängt. Diese verfügen über 3 unabgesättigte  $p$ -Elektronen, welche bevorzugt  $p^3$ -Bindungen bilden. Die  $p^3$ -Hybridfunktion hat ihre Maxima in Richtung  $+x$ ,  $+y$ ,  $+z$  eines rechtwinkligen Koordinatensystems. Im Kristall entstehen dadurch Pyramiden  $\text{CX}_3$ , was die Symmetrie des Gitters stark erniedrigt.

Das Pb hingegen wird in diesen Verbindungen durch 2  $p$ -Elektronen in einer Resonanzbindung gebunden. Die Maxima seiner Bindungsfunktion weisen in Richtung  $\pm x$ ,  $\pm y$ ,  $\pm z$ . Das Pb erzeugt deshalb wenn immer möglich eine oktaedrische Umgebung, also hohe Symmetrie. Die gleiche Elektronenkonfiguration wie  $\text{Pb}^{++}$  besitzen auch  $\text{Tl}^+$  und  $\text{Sb}^{3+}$ ,  $\text{Bi}^{3+}$ , weshalb Verbindungen  $\text{AB}_x\text{CX}_{2+x}$  ebenfalls im PbS-Gitter kristallisieren.

In verschiedenen  $\text{A}_x\text{B}_y\text{C}_z\text{X}$ -Verbindungen ist diese PbS-Struktur beziehungsweise ausgebildet (vgl. HELLNER<sup>5</sup>). Die Verknüpfung dieser oktaedrischen Gebiete mit den tetraedrischen oder pyramidalen Bereichen führt auf niedrige Symmetrie und grosse Elementarzellen. Interessant ist, dass nicht nur bei den  $\text{ABCX}_3$ -Verbindungen Mischkristalle  $\text{AB}_x\text{CX}_{2+x}$  auftreten, sondern wahrscheinlich auch bei niedersymmetrischen Verbindungen  $\text{A}_2\text{B}_2\text{C}_{2n}\text{X}_{3n+3}$  in Analogie zum Rezbanyit  $\text{Cu}_2\text{Pb}_2\text{Bi}_{2n}\text{S}_{3n+3}$ .

Die Mineralien mit Übergangselementen wurden nicht berücksichtigt, obwohl diese Methode zur Auffindung neuer Halbleiter gerade durch eine frühere Untersuchung an Verbindungen mit Übergangselementen<sup>6</sup>) angeregt wurde und natürlich auch bei jenen Mineralien auf neue Verbindungen führt. So konnten in Analogie zum halbleitenden Arsenopyrit  $\text{FeAsS}$  die isomorphen Halbleiterverbindungen  $\text{FeAsSe}$ ,  $\text{FePS}$  und in Analogie zum Cobaltin  $\text{CoAsS}$  die im Cobaltgitter kristallisierenden Halbleiterverbindungen  $\text{CoPS}$  ( $a = 5,422 \pm 0,002 \text{ \AA}$ ) und  $\text{CoAsSe}$  ( $a = 5,760 \pm 0,002 \text{ \AA}$ ) hergestellt werden.

Bis heute kennt man noch nicht einmal von der Hälfte der möglichen binären Halbleiter die physikalischen Eigenschaften. Die Zahl der ternären und quaternären Halbleiterverbindungen aber ist so gross, dass es eines guten Spürsinns bedarf, um aus der Vielzahl gerade die physikalisch und technisch interessanten Verbindungen herauszulesen.

Dem Verein zur Förderung der Festkörperphysik an der ETH danken wir für die Gewährung finanzieller Mittel.

### Literatur

- <sup>1)</sup> F. BEIJERINCK, N. Jahrb. Min. XI. Beil. bd. 1897/98, 403.
- <sup>2)</sup> HENRICI und HAUSMANN, Stud. d. Gött. Ver. Bergm. Freunde 4 (1834). – VON KOBELL, Münch. gel. Anzeiger 89–90 (1850), zitiert in <sup>1)</sup>.
- <sup>3)</sup> E. MOOSER und W. B. PEARSON, J. Electronics 1, 629 (1956).
- <sup>4)</sup> V. P. ZHUZE, V. M. SERGEEVA und E. L. SHTRUM, Soviet Phys. Tech. Phys. 3, 1925 (1958).
- <sup>5)</sup> E. HELLNER, J. Geol. 66, 502 (1958).
- <sup>6)</sup> F. HULLIGER, Helv. Phys. Acta 32, 615 (1959).

# A Monte-Carlo Calculation for a Size Effect Problem

by B. Lüthi\*) and P. Wyder

Institut für Kalorische Apparate und Kältetechnik, ETH, Zürich

*Abstract.* The Monte-Carlo Method is used for calculating a size effect problem in electrical conductivity in which, besides impurity and surface scattering, small angle electron-phonon scattering is also present. The calculated mean free path shows a dependence on the diameter of the wire in agreement with recent experimental results by OLSEN. The method of calculation and the results are discussed in detail.

## I. Introduction

It is well known that one important difficulty in solving the Boltzmann transport equation for electrical conduction at low temperatures lies in the fact that a single electron-phonon collision is quite insufficient to re-establish the electron equilibrium distribution (ZIMAN<sup>1</sup>). Moreover, if there are also other scattering mechanisms present as impurity scattering or boundary scattering, then the problem of calculating a resistance becomes very complicated. So far only special cases have been solved such as BLOCH's<sup>2</sup>) classical calculation of the high and the low temperature electrical resistance and the treatment of the size effect problem by FUCHS<sup>3</sup>). In the latter case a free electron model is used and the scattering at the wall, which is assumed to be partly diffuse and partly specular, is described by means of boundary conditions for the electron distribution function.

Recently OLSEN<sup>4</sup>) observed a deviation from Matthiessen's rule in measuring the size dependence of the resistance of indium wires. This deviation cannot be explained by any simple extension of Fuchs' calculation still assuming independent relaxation times for the different scattering processes. In the accompanying paper, BLATT and SATZ<sup>5</sup>) present a calculation where account is taken of the fact that the surface scattering and the phonon and impurity scattering cannot be really treated as independent. They also consider the effect of Umklapp scattering\*\*).

We have approached the problem from a purely kinetical standpoint, and have made a Monte-Carlo calculation for this case. Although one only gets numerical expressions for the result, the great advantage of this method is that one can take the different scattering processes exactly into account, especially the small angle electron-phonon interaction at

\*) Now at the Institute for the Study of Metals, University of Chicago.

\*\*) We are grateful to Professor F. J. BLATT for making available to us this paper prior to publication.

low temperatures. In limiting cases such as impurity scattering only, this method must give the same results as Fuchs' theory. As far as we know the Monte-Carlo Method has not been applied to an electrical conduction problem so far and this is just one example to show its usefulness for this sort of problem.

In the following sections we first describe the physical picture used for the conduction processes and then show details of the computer programme. Finally, the results are presented and discussed.

## II. Description of the Method

OLSEN<sup>4)</sup> measured the electrical resistance of indium wires of different diameters from 0.06 mm to 2 mm and between 1° and 4° K. These results are shown in Figure 1 where it will be seen that the change in resistivity

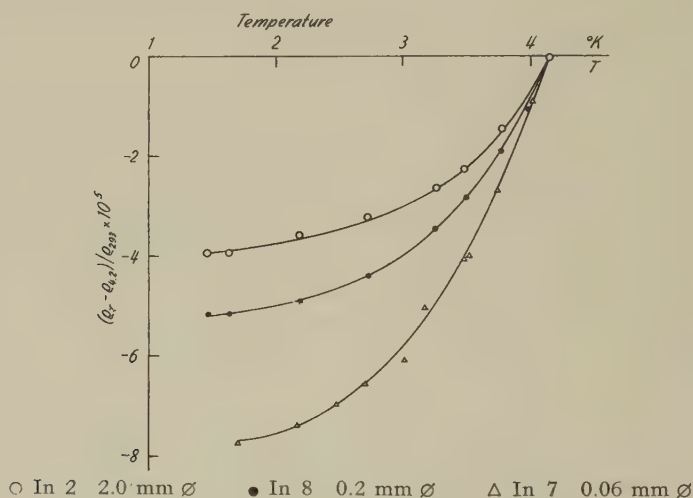


Fig. 1 Resistivity change in indium. Olsen's experimental results

with temperature is greater, the thinner the wires. A similar effect may be found if older size effect measurements by ANDREW<sup>6)</sup> on tin are studied. As already mentioned, these results cannot be explained by a simple application of Fuchs' theory.

OLSEN has explained the results qualitatively as follows: The smaller the diameter of the wire the sooner even electrons initially moving parallel to the axis of the wire will reach the boundary by means of small angle electron-phonon processes which would be insufficient to terminate an effective free path in the bulk material. At the wall, however, the electron suffers a diffuse collision helping to establish the equilibrium distribution again. These processes are responsible for the temperature dependence of



the different specimens: The temperature dependence is more pronounced, the thinner the wire, which is actually also observed.

We believe that this explanation is right in principle and we work with the following physical picture: The isotropic impurity scattering is represented by a fixed mean free path  $l_i$ , its actual value is taken from the experiments. The electron-phonon interaction is idealized as follows: A small mean free path  $l_{ph}^0$  is assumed which is the result of a single electron-phonon process and the value of which is estimated by taking the experimentally well founded  $T^5$ -law<sup>7)</sup> for the bulk resistance and by dividing the mean free path obtained in this way by a number  $N_0$  defined in the next section. As there are many processes of this sort necessary to randomize the electron momentum, a distribution function is taken to specify the number of such events, which determine an effective electron-phonon process. The scattering at the wall is assumed to be purely diffuse, in accordance with generally current opinions (ZIMAN<sup>4)</sup>).

Now, in the Monte-Carlo Method, an electron is observed during its path in the metal. A small distance  $l_0$  ( $l_0$  much smaller than any distance appearing in the problem) is introduced. After having passed this distance, the computer decides whether the electron is scattered or not, and if scattered, which sort of process happens and which new direction the electron takes. After having passed a distance  $l_0$  the total mean free path  $l$  is calculated, i. e. the total length travelled, divided by the total number of collisions (impurity, wall and effective electron-phonon collisions). Perhaps it is worth mentioning that we have assumed a free electron model here and that the Pauli principle is not violated, since the electron always has the fixed Fermi velocity. Furthermore, Umklapp-processes are neglected.

### III. The Programme and the Calculation

The calculations were carried out on the ERMETH-Computer (Elektronische Rechenmaschine der Eidgenössischen Technischen Hochschule) at the Institute of Applied Mathematics of the ETH. The structure of the programme is shown in Figure 2. The following parameters were used:

- 1)  $l_i$  = mean free path for impurity scattering
- 2)  $l_{ph}^0$  = mean free path for a single electron-phonon process
- 3)  $\omega_{ph}$  = maximum angle at which an electron can be scattered by a phonon
- 4)  $N_0$  = average value of the number of electron-phonon collisions  $N$  necessary to randomize the electron momentum.  $N_0 \approx (\hbar/q)^2$  where  $\hbar$  = electron wave vector,  $q$  = phonon wave vector
- 5)  $\Delta N$  = variation width of  $N_0$ . Inside the region  $2\Delta N$  every value  $N$  is taken as equally probable
- 6)  $d$  = diameter of the wire
- 7)  $L_{tot}$  = total length passed by an electron during the calculation
- 8)  $k$  = number which specifies the small length  $l_0$  introduced in section II
- 9)  $r_0$  = random number which starts the calculation of the random numbers  $r$

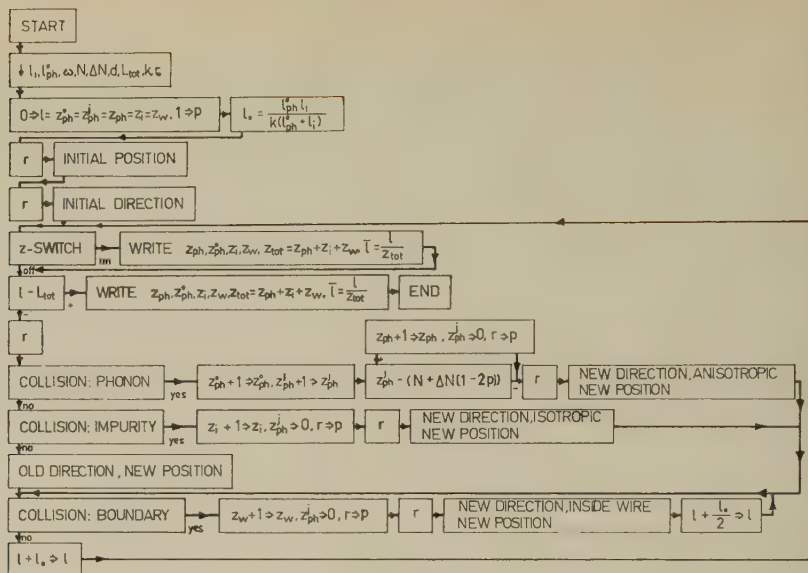


Fig. 2 Structure of the computer programme

Values for all these parameters actually used and the corresponding mean free path  $l$ , calculated with the Monte-Carlo method are given in Table I.

Table I

$T$ (°K)	$l_i$ (mm)	$l_{ph}$ (mm)	$\omega_{ph}$	$N_0$	$\Delta N$	$d$ (mm)	$L_{tot}$ (mm)	$k$	$\tau_0$	$l$ (mm)
0	0.5	$10^{150}$	0	$10^{150}$	0	0.05	300	100	12	0.046
1	0.5	5	0.1	100	100	0.05	300	50	5	0.0462
2	0.5	0.625	0.2	25	25	0.05	300	25	25	0.0459
3	0.5	0.185	0.3	11	11	0.05	300	27	12	0.0428
4	0.5	0.08	0.4	6	6	0.05	300	7	13	0.0418
10	0.5	0.005	1	1	1	0.05	300	50	7	0.0063
0	0.5	$10^{150}$	0	$10^{150}$	0	0.1	300	100	17	0.0841
1	0.5	5	0.1	100	100	0.1	300	25	6	0.0838
2	0.5	0.625	0.2	25	25	0.1	300	28	4	0.0834
3	0.5	0.185	0.3	11	11	0.1	300	15	8	0.0803
4	0.5	0.08	0.4	6	6	0.1	300	14	7	0.0725
0	0.5	$10^{150}$	0	$10^{150}$	0	2.0	300	100	18	0.426
1	0.5	5	0.1	100	100	2.0	300	2	9	0.416
2	0.5	0.625	0.2	25	25	2.0	300	5	4	0.364
3	0.5	0.185	0.3	11	11	2.0	300	7	8	0.326
4	0.5	0.08	0.4	6	6	2.0	300	7	9	0.253
10	0.5	0.005	1	1	1	2.0	300	10	13	0.0069

The actual procedure for the calculation is now the following: The electron starts at a point inside the wire, determined by random numbers. It goes along a direction, also chosen randomly, for a length  $l_0$ . Then the computer, always calculating the coordinates of the electron, decides what happens at this point. If no collision occurs, the electron passes another length  $l_0$  in the same direction. If, however, there is an impurity collision, the random numbers determine the new direction of the electron path (every direction of the whole solid angle is taken to be equally probable). If a phonon collision takes place, the new direction can only deviate from the old one inside the region  $\omega_{ph}$ . Finally, at collisions with the wall, every direction which points into the wire is possible. Along the new direction the electron passes a length  $l_0$  and the same procedure starts again. An effective electron-phonon collision happens, if the number of single electron-phonon collisions is equal to  $N$ , where  $N$  lies somewhere between  $N_0 - \Delta N$  and  $N_0 + \Delta N$ .

For the creation of the random numbers  $r$  by means of the computer the well known method of FIBONACCI<sup>8)</sup> was used. Here, two 14-figure random numbers are added, to this new number the last of the first two is again added, etc. By neglecting the first few figures, in fact by taking only an 11-figure number and by putting an 0... before the figures, a number is created which varies between 0 and 1 with equal weights.

Since the ERMETH-Computer is too slow for this sort of problem as a Monte-Carlo calculation if the correct physical value of  $\omega_{ph}$  is used in it, a number of simplifications had to be introduced: 1) The values listed in Table I for  $\omega_{ph}$  and  $N_0$  are not the theoretically estimated ones  $\omega'_{ph}, N'_0$ , but corrected in the sense that the amount of calculation is diminished considerably:  $\omega_{ph} = 10 \omega'_{ph}$ ,  $N_0 = 1/100 N'_0$ . 2) The typical length  $l_0$  was always chosen 10 times smaller than the smallest distance appearing in the problem. A detailed analysis of this showed that  $l_0$  was still too big to give exact agreement in cases where the problem is solvable theoretically (see next section). 3) For reducing the statistical error further the calculated mean free path was plotted as a function of the total number

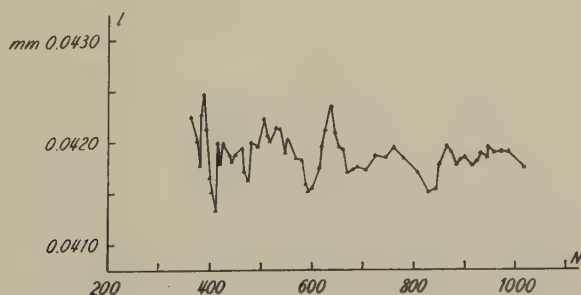


Fig. 3 The mean free path as a function of the total number of collisions

of collisions as shown in Figure 3. In this way the actual fluctuation is seen and an approximative statistical error can be determined.

Finally it is assumed that the computer could withstand psychokinetic influences of the authors (for detailed arguments see RHINE<sup>9</sup>).

#### IV. Results and Discussion

The following programme was calculated: 3 different specimens of 0.05, 0.1 and 2 mm diameter and at temperatures of 0, 1, 2, 3, 4 and 10° K. The parameters used are given in Table I. The results are plotted in Figure 4 which shows the temperature dependence and the actual value

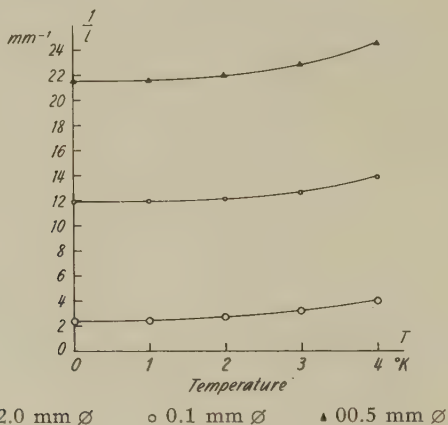


Fig. 4 Temperature dependence and actual value of the resistance, calculated by the Monte-Carlo Method

of the resistance. The violation of Matthiessen's rule is made clear in Figure 5 in a representation similar to Figure 1. One recognizes a striking agreement between the two figures, which shows that our model used for calculating this effect is essentially correct.

The values of the mean free path at  $T = 0^\circ \text{K}$  should agree with the values calculated by the theory of FUCHS<sup>3</sup>), as evaluated by DINGLE<sup>10</sup>) for the case of diffuse scattering and cylindrical wires. Table II gives the theoretical values of Dingle and our values from the Monte-Carlo calculation.

The small discrepancy between these two sorts of values (in the worst case only 6%) is, as a special analysis showed, due to the fact that the length  $l_0$  was not chosen small enough. In Figure 6 the dependence of the computed mean free path on  $l_0$  is plotted and one can see that Dingle's value is reached asymptotically for  $l_0 \rightarrow 0$ .

Our values for  $T = 0^\circ \text{K}$  and for different sizes fulfil the Nordheim relation<sup>11</sup>)  $1/l = 1/l_i + 1/d$  as shown in Figure 7 by the straight line which cuts the ordinate roughly at the expected value  $l = 0.5 \text{ mm}$ .

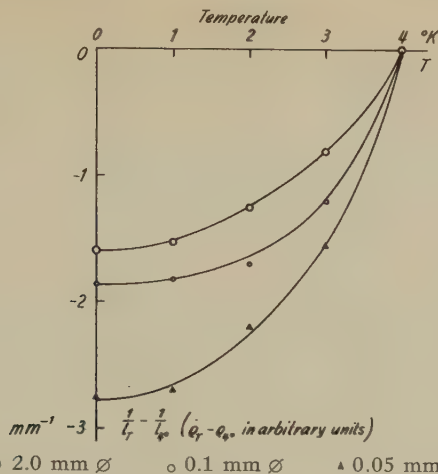


Fig. 5 Violation of Matthiessen's rule, calculated by the Monte-Carlo Method

Table II

$d$ (mm)	$l$ (Dingle) (mm)	$l$ (Monte Carlo) (mm)
0.05	0.0437	0.0464
0.1	0.079	0.0841
2.0	0.394	0.426

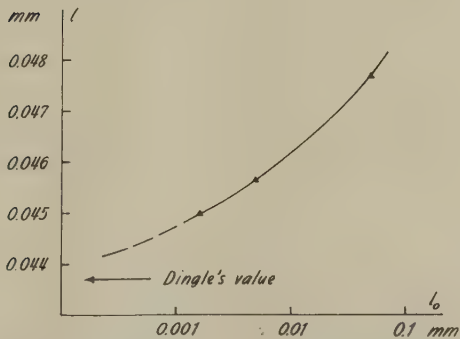


Fig. 6 The dependence of the mean free path on  $l_0$

By using the Monte-Carlo Method we have been able to determine the electrical resistance of such a complicated case as a thin wire in the presence of a variety of scattering mechanisms. Although some simplifications had to be introduced, we believe that the neglected parameters would not have a great influence because they average out partly as for



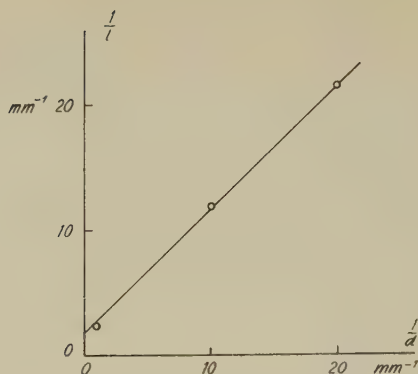


Fig. 7 Nordheim relation

example the detailed band structure or the actual electron-phonon interaction with all refinements involved or Umklapp-processes etc.

Generalisations of this method to similar problems, as for instance a similar size effect in thermal conductivity or the magnetoresistive size effect (which shows a deviation of Kohler's rule<sup>4)</sup>) etc. are obvious, although the time of calculation with a computer of the ERMETH-type may become enormous.

#### Acknowledgments

We are grateful to Professor Dr. P. GRASSMANN, the Director of the Institut für Kalorische Apparate und Kältetechnik, for his constant interest in this research. A special thank is due to Dr. J. L. OLSEN for very fruitful discussions and comments. To Professor Dr. E. STIEFEL, the Director of the Institute of Applied Mathematics, and to the members of his Institute, we should also like to express our gratitude for placing the ERMETH electronic computer at our disposal. The work was supported by a credit from the 'Arbeitsbeschaffungskredite des Bundes'.

#### References

- <sup>1)</sup> J. M. ZIMAN, *Electrons and Phonons*, Oxford (1960).
- <sup>2)</sup> F. BLOCH, *Z. Phys.* **52**, 555 (1928).
- <sup>3)</sup> K. FUCHS, *Proc. Camb. Phil. Soc.* **34**, 100 (1938).
- <sup>4)</sup> J. L. OLSEN, *Helv. Phys. Acta* **31**, 713 (1958).
- <sup>5)</sup> F. J. BLATT and H. G. SATZ, *Helv. Phys. Acta* **33**, 707 (1960).
- <sup>6)</sup> E. R. ANDREW, *Proc. Phys. Soc. [A]* **62**, 77 (1949).
- <sup>7)</sup> G. K. WHITE and S. B. WOODS, *Rev. Sci. Instr.* **28**, 638 (1957).
- <sup>8)</sup> B. F. GREEN, J. E. K. SMITH, and L. KLEIN, *J. Assoc. Comp. Mach.* **6**, 527 (1959).
- <sup>9)</sup> J. B. RHINE, *The Reach of the Mind*, New York (1947).
- <sup>10)</sup> R. B. DINGLE, *Proc. Roy. Soc. [A]* **201**, 545 (1950).
- <sup>11)</sup> L. NORDHEIM, *Act. Sci. et Ind.* No. 131, Paris (1934).

# Druck- und Volumeneffekte in der Supraleitung

von Heinrich Rohrer

Institut für kalorische Apparate und Kältetechnik, ETH, Zürich

*Abstract.* The change of length of Sn-, Pb-, Tl-, Ta-, La- and V-polycrystals and In- and Hg-single crystals at the superconducting transition have been measured with an optical lever system down to 1.4° K. From this, the change of the critical magnetic field under pressure and the volume dependence both of the critical temperature,  $T_c$ , and of the density of levels at the Fermi surface,  $N$ , have been calculated:

	In	Sn	Pb	Hg	Tl	Al	Cd	Ta	V	La
$\frac{v}{T_c} \frac{\partial T_c}{\partial v}$	5.2	6.6	3.1	3.0	-1.5	17	24.5	3	-3.5	-0.5
$\frac{v}{N} \frac{\partial N}{\partial v}$	1.0	2.7	3	10	3.4	8	-9	6	-0.6	-3.4

Where  $v$  is the volume.

The volume dependence of the density of levels is found normal for In, Sn, Pb, Ta, V, and La, but extremely large for Hg, Cd and Al. A qualitative explanation is given for the extraordinary behaviour of these latter three superconductors.

Further we found that the volume dependence of the total electron-electron-interaction of the Bardeen-Cooper-Schrieffer-theory is the same for nearly all superconductors.

## I. Einleitung

An der Phasengrenze normal-supraleitend ändert sich, wie viele andere Grössen, auch das Volumen des Supraleiters. Diese Volumenänderung ist durch eine einfache Beziehung mit dem Druckkoeffizienten des kritischen Magnetfeldes,  $\partial H_c / \partial p$ , verknüpft. Direkte Bestimmungen von  $\partial H_c / \partial p$  und  $\partial T_c / \partial p$  – Messung der Änderung des kritischen Magnetfeldes und der kritischen Temperatur eines Supraleiters unter Druck – wurden von verschiedenen Autoren durchgeführt<sup>1-10</sup>). Mit dieser direkten Methode erhält man die Änderung der kritischen Temperatur mit dem Druck für Aluminium, Indium, Zinn, Thallium und Tantal recht gut; Messungen des Druckkoeffizienten des kritischen Magnetfeldes weisen dagegen beträchtliche Fehler auf und ergeben in vielen Fällen höchstens qualitative Resultate. Wir haben deshalb versucht, mit einer Weiterentwicklung einer Apparatur, die OLSEN<sup>11)</sup> zur Bestimmung der Änderung des Schubmoduls beim Übergang normal-supraleitend anwandte, die Volumen-

änderung beim Übergang normal-supraleitend zu messen. Wir erhielten so Werte von  $\partial H_c / \partial p$ , die in den meisten Fällen wesentlich genauer sind, als die mit der direkten Methode bestimmten. Es wurden folgende Supraleiter untersucht: Pb, Sn, Tl, Ta, V, La, sowie Einkristalle von In und Hg.

Aus der Temperaturabhängigkeit des Druckkoeffizienten des kritischen Magnetfeldes lässt sich die Änderung der kritischen Temperatur,  $T_c$ , des kritischen Magnetfeldes bei  $T = 0^\circ \text{K}$ ,  $H_0$ , und des Koeffizienten der spezifischen Wärme des Elektronengases pro Mol im normalleitenden Zustande,  $\gamma$ , bei einer Änderung des Volumens des Supraleiters berechnen. Das ergibt uns einerseits den Einfluss einer Volumenänderung auf die Supraleitung und damit auch auf die Elektron-Elektron-Wechselwirkung im Metall. Andererseits ist die Änderung von  $T_c$  mit dem Druck beziehungsweise mit dem Volumen eine der wenigen Grössen, an denen Anisotropieeffekte der Supraleitung studiert werden können.

## II. Thermodynamik

Die Beziehung zwischen der Volumenänderung des Supraleiters an der Phasengrenze normal-supraleitend und der Änderung des kritischen Magnetfeldes mit dem Druck lässt sich auf einfache Weise mit Hilfe der Thermodynamik herleiten. Nach der üblichen Behandlung der Phasenübergänge erhält man für einen Einkristall<sup>12)13)</sup>

$$\frac{l_{n\theta} - l_{s\theta}}{l_{s\theta}} = \frac{1}{4\pi} H_c (\partial H_c / \partial p_\theta) + \frac{1}{8\pi} H_c^2 \frac{1}{l_{s\theta}} (\partial l_{s\theta} / \partial p_\theta) \quad (1)$$

$l_{n\theta}$  und  $l_{s\theta}$  bedeuten dabei die Länge des Supraleiters im normalen beziehungsweise supraleitenden Zustand in einer Richtung, die um den Winkel  $\theta$  zu einer je nach dem Kristallsystem noch zu wählenden Achse geneigt ist.  $p_\theta$  ist ein einseitiger Druck (Druckspannung) in Richtung  $\theta$ . Bei allen untersuchten Supraleitern ist der zweite Term auf der rechten Seite von Gleichung (1) klein – bei Ta ist der Beitrag im Maximum 6% von  $\Delta l/l$ , bei den weichen Supraleitern immer weniger als 2% – und kann daher vernachlässigt werden. Somit darf man in guter Näherung setzen

$$\frac{l_{n\theta} - l_{s\theta}}{l_{s\theta}} \approx \frac{1}{4\pi} H_c (\partial H_c / \partial p_\theta). \quad (1')$$

Aus der Temperaturabhängigkeit von  $\partial H_c / \partial p_\theta$  kann nun die Änderung von  $T_c$ , der kritischen Temperatur, von  $H_0$ , dem kritischen Feld am absoluten Nullpunkt, und von  $\gamma^*$ , der spezifischen Elektronenwärme pro Volumeneinheit im normalleitenden Zustande, mit dem Druck berechnet werden. Ist das kritische Feld gegeben durch  $H_c = H_0 f(t)$  ( $t$  bedeutet die reduzierte Temperatur  $T/T_c$ ), so erhält man mit Hilfe der Beziehung<sup>14)</sup>

$$\gamma^* T_c^2 = \frac{1}{4\pi} H_0^2 (\partial^2 f(t) / \partial t^2)_{t=0} \equiv \frac{1}{4\pi} H_0^2 f''(0) \quad (2)$$

durch Ableiten des kritischen Feldes nach dem Druck  $p_\theta$

$$\frac{1}{H_0} (\partial H_c / \partial p_\theta) = \frac{1}{2\gamma^*} (\partial \gamma^* / \partial p_\theta) \cdot f(t) - \frac{1}{T_c} (\partial T_c / \partial p_\theta) (f(t) - t f'(t)) + A. \quad (3)$$

In der Grösse  $A$  ist die Änderung von  $f(t)$  mit dem Druck enthalten. Sehr genaue Messungen des Druckeffektes des kritischen Magnetfeldes an Blei von Mapother zeigen\*), dass  $f(t)$  durch den Druck nicht – oder mindestens viel weniger als  $\gamma^*$  und  $T_c$  – beeinflusst wird. Dies ist auch sehr plausibel, da sich  $\gamma^*$  und  $T_c$  von Supraleiter zu Supraleiter viel stärker ändern als  $f(t)$ .

Uns interessieren vor allem die Änderungen von  $\gamma$ ,  $T_c$  und  $H_0$  mit dem Volumen des Supraleiters (Volumeneffekt). Für die spätere Interpretation der Resultate ist es günstig, diese Änderungen mit dem Volumen durch dimensionslose Grössen auszudrücken. Diese lassen sich aus den Druckkoeffizienten folgendermassen herleiten:

$$h_\theta = \frac{\partial \log H_0}{\partial \log v} = \frac{1}{H_0} (\partial H_0 / \partial p_\theta) \cdot v (\partial p_\theta / \partial v) \quad (4a)$$

$$s_\theta = \frac{\partial \log T_c}{\partial \log v} = - \frac{1}{T_c} \frac{(\partial H_c / \partial p_\theta) T - T_c}{(\partial H_c / \partial T) T - T_c} \cdot v (\partial p_\theta / \partial v) \quad (4b)$$

$$g_\theta = \frac{\partial \log \gamma}{\partial \log v} = \frac{\partial \log N}{\partial \log v} \quad (4c)$$

$$g_\theta^* = \frac{\partial \log \gamma^*}{\partial \log v} = \frac{\partial \log N^*}{\partial \log v} = 2 (h_\theta - s_\theta) = g_\theta - 1. \quad (4c^*)$$

Dabei bedeuten  $[v(\partial p_\theta / \partial v)]^{-1}$  die durch  $p_\theta$  verursachte relative Volumenänderung,  $N$  und  $N^*$  die Zustandsdichte an der Fermigrenze pro Energie und Mol beziehungsweise pro Energie und Volumen und  $\gamma$  die Elektronenwärme pro Mol.

Die Gleichungen (4) geben die relativen Änderungen von  $T_c$ ,  $H_0$  und  $\gamma$  bezüglich sehr komplizierter Deformationen des Kristallgitters an. Um besser überblicken zu können, was bei einer Änderung des Volumens mit  $T_c$ ,  $H_0$  und  $\gamma$  tatsächlich geschieht, sollten die Volumenänderungen möglichst einfach sein. Die einfachsten Deformationen sind einseitige (lineare) Dehnungen. Der zu einer solch einseitigen Dehnung gehörende Spannungszustand sei durch die Druckkomponenten  $p_i$  charakterisiert. Man erhält für die Änderung von  $H_c$  unter diesem Spannungszustand

$$\Delta H_c = \sum_i (\partial H_c / \partial p_i) p_i \quad i = 1, \dots, 6. \quad (5)$$

Damit können wir einen zu  $h_\theta$  analogen Ausdruck bilden

$$h'_\theta = \frac{\partial \log H_0}{\partial \log v'} = \frac{v}{H_0} \frac{\sum (\partial H_0 / \partial p_i) p_i}{\Delta v'_\theta} \quad (4a')$$

\*) Private Mitteilung.

$\Delta v'_\theta$  bedeutet dabei die mit der einseitigen Dehnung in Richtung  $\theta$  verbundene Volumenänderung. Gleiche Ausdrücke lassen sich für  $s'_\theta$  und  $g'_\theta$  angeben. Im folgenden sollen daher die Bemerkungen für  $h'_\theta$  auch für  $s'_\theta$  und  $g'_\theta$  gelten.

Bei einer Deformation in einer bestimmten Richtung treten im zugehörigen Spannungszustand auch Schubspannungen auf. Ihr Einfluss auf das kritische Feld ist bis jetzt leider nur im Falle des polykristallinen Zinn von OLSEN<sup>10)</sup> gemessen worden. Dürfen aber die  $p_i$  in Gleichung (5) nur Druck- oder Zugspannungen sein, so kann  $\Delta H_c$  einzig für einseitige Dehnungen längs einer Achse angegeben werden. Das beschränkt die Kenntnis der Anisotropie von  $h'_\theta$  auf die drei Werte in den Achsenrichtungen. Man hat dabei aber den Vorteil, in  $h'_\theta$  die Anisotropie des Volumeneffektes allein zu erhalten, während in  $h_\theta$  auch die Anisotropie der elastischen Konstanten enthalten ist. Da die von uns untersuchten Einkristalle alle eine mehrzählige Symmetrieachse besitzen, genügt es,  $h'_\theta$  parallel und senkrecht zu dieser Achse anzugeben ( $h'_\parallel$  und  $h'_\perp$ ). Die relative Änderung von  $H_0$  bezüglich gleicher Dehnungen in drei zueinander senkrechten Richtungen (gleichmässige Deformation) ist dann  $h' = h'_\parallel + 2 h'_\perp$ . In Tabelle I sind für Indium, Zinn und Quecksilber die für Dehnungen parallel und senkrecht zur Symmetrieachse ( $\Delta v_\parallel/v = \Delta v_\perp/v = \Delta v/v = 1$ ) notwendigen Drucke angegeben. Dabei bedeuten  $p_\parallel$ ,  $p_{\perp 1}$  und  $p_{\perp 2}$  einseitige Drucke parallel und senkrecht zur Symmetrieachse;  $p_{\perp 1}$  ist senkrecht zu  $p_{\perp 2}$ .  $\Delta v_\parallel$  ist die Volumenänderung bei einer Dehnung des Kristalls in Richtung der Symmetrieachse,  $\Delta v_{\perp 1}$  in Richtung  $p_{\perp 1}$  und  $\Delta v = 1/3 (\Delta v_\parallel + \Delta v_{\perp 1} + \Delta v_{\perp 2})$ . Die elastischen Konstanten bei Zimmertemperatur wurden für Indium einer Arbeit von WINDER und SMITH<sup>15)</sup> entnommen, für Zinn und Quecksilber wurden die Messungen von BRIDGMAN<sup>16</sup> und GRÜNEISEN<sup>17)</sup> benutzt.

Tabelle I  
Spannungszustände für einseitige und allseitig gleichmässige Dehnungen

	In			Sn			Hg		
	$p_\parallel$	$p_{\perp 1}$	$p_{\perp 2}$	$p_\parallel$	$p_{\perp 1}$	$p_{\perp 2}$	$p_\parallel$	$p_{\perp 1}$	$p_{\perp 2}$
$\Delta v_\parallel/v = 1$	4,17	3,78	3,78	9,7	2,9	2,9	5,0	3,0	3,0
$\Delta v_{\perp 1}/v = 1$	3,70	4,10	3,60	3,28	8,92	5,70	3,2	3,6	3,2
$\Delta v/v = 1$	3,9	4,0	4,0	5,0	5,9	5,9	3,8	3,1	3,1

$p_\parallel$ ,  $p_{\perp 1}$ , und  $p_{\perp 2}$  sind in  $10^{11}$  dyn cm<sup>-2</sup> angegeben.

Um nach Gleichung (5)  $h'$ ,  $h'_\parallel$  und  $h'_\perp$  zu berechnen, müssen die Druckkoeffizienten des kritischen Magnetfeldes für Drucke senkrecht und parallel zur Symmetrieachse bekannt sein. Man erhält sie leicht aus  $\partial H_c / \partial p_\theta$  für zwei verschiedene, aber sonst beliebige Richtungen  $\theta^1$  und  $\theta^2$ :



$$(\partial H_c / \partial p_{\theta i}) = (\partial H_c / \partial p_{\parallel}) \cos^2 \theta^i + (\partial H_c / \partial p_{\perp}) \sin^2 \theta^i \quad i = 1, 2 \quad (6)$$

$\theta^i$  bedeutet dabei den Winkel zwischen  $p_{\theta i}$  und der Symmetrieachse.

Der Druckkoeffizient des kritischen Magnetfeldes für hydrostatischen Druck ist nach Gleichung (5) gegeben durch

$$(\partial H_c / \partial p) = (\partial H_c / \partial p_{\parallel}) + 2 (\partial H_c / \partial p_{\perp}). \quad (7)$$

Für die Volumenänderung eines Einkristalls beim Übergang normal-supraleitend erhält man damit eine zu Gleichung (1) analoge Beziehung:

$$\frac{\Delta v}{v_s} = \frac{\Delta l_{\parallel}}{l_{\parallel}} + 2 \frac{\Delta l_{\perp}}{l_{\perp}} = \frac{1}{4\pi} H_c (\partial H_c / \partial p). \quad (8)$$

In einem Polykristall aus nicht-kubischem Material treten beim Übergang normal-supraleitend an den Grenzflächen der einzelnen Kristallite Schubspannungen auf. Nimmt man an, dass sich im Mittel der Einfluss dieser Schubspannungen auf die Volumenänderungen aufhebt, so gilt Gleichung (8) ebenfalls für einen Polykristall. Seine Längenänderung beim Übergang normal-supraleitend ist dann  $\Delta l / l = 1/3 (\Delta v / v)$ .

### III. Experiment

Zur Messung der sehr kleinen Längenänderungen des Supraleiters beim Übergang normal-supraleitend wurden verschiedene Methoden angewendet. KAN, LASAREW und SUDOVSTOV<sup>18)</sup> bestimmten an Zinn  $\Delta l$  mit Hilfe der Durchbiegung eines Bimetallstreifens, dessen eine Komponente der Supraleiter war. CODY<sup>13)</sup> änderte mit  $\Delta l$  den Plattenabstand eines Kondensators und bestimmte die Verschiebung der Resonanzfrequenz eines Schwingkreises. Dasselbe Verfahren wurde übrigens auch mit Erfolg von SURANGE und DHEER<sup>19)</sup> zur Messung des thermischen Ausdehnungskoeffizienten von Blei bei tiefen Temperaturen benützt. Die von uns verwendete Methode versuchte schon sehr früh McLENNAN<sup>20)</sup> erfolglos zur Bestimmung von  $\Delta l$  bei Blei. Sie ist im folgenden Abschnitt beschrieben.

#### 1. Apparatur

*Prinzip.* Die Längenänderungen der Proben (2–100 Å) werden auf mechanischem Wege in eine Drehbewegung umgewandelt, die sich durch Ablenkung eines Lichtstrahls messen lässt.

*Anordnung.* Fig. 1 zeigt eine schematische Darstellung der Apparatur. Die Probe befindet sich mit dem Transformationssystem (Umwandlung der Längenänderung in eine Drehbewegung) im flüssigen Helium, dessen Temperatur durch Abpumpen im Bereiche von 1,3° K bis 4,2° K verändert werden konnte. Der Drehstab überträgt die Drehbewegung in den «Zimmertemperaturteil» der Apparatur, in dem die Winkeländerung des

Stabes gemessen wird. Eine Magnetspule um das Aussendewar erzeugt das zur Zerstörung der Supraleitung nötige Magnetfeld. Die Inhomogenität des Feldes im Bereich der Probe war kleiner als  $10/100$ , ausser bei

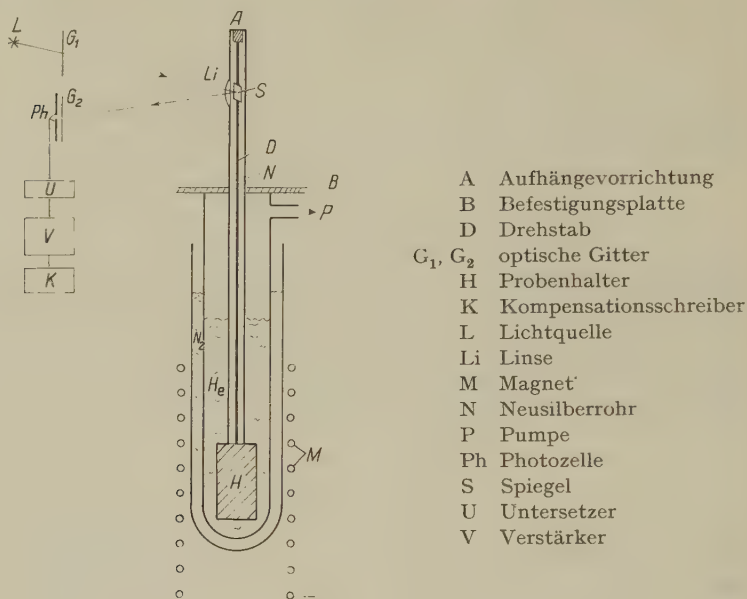


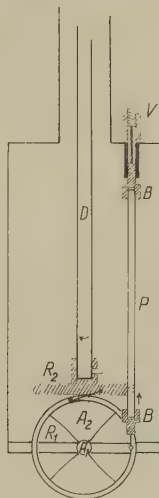
Fig. 1  
Apparatur

dem für harte Supraleiter verwendeten Magneten. Hier kamen Felder von der Grössenordnung von 2000 Oersted zur Anwendung, deren Inhomogenität etwa 1% betrug.

*Mechanischer Teil.* An die Aufhängevorrichtung und das Transformationssystem müssen vor allem zwei Forderungen gestellt werden. Erstens dürfen sie Vibrationen der Apparatur (hervorgerufen durch das Sieden des Heliums und des flüssigen Stickstoffs sowie durch Gebäudeerschütterung) nicht in Drehbewegungsschwankungen des Drehstabes umwandeln. Zweitens sollen sie aber Drehbewegungen möglichst kraftlos übertragen, damit nichts von der zu messenden Längenänderung in einer Torsion des Drehstabes und einer Dehnung der Probe verloren geht. Mit der getroffenen Lösung konnte diesen beiden entgegengesetzten Forderungen weitgehend Genüge geleistet werden.

Fig. 2 zeigt den Probenhalter mit Transformationssystem. Dieses besteht im wesentlichen aus zwei zueinander senkrechten Rädchen mit biegsamen Speichen und starren Achsen. Als Speichenmaterial wurde

0,3 mm dickes Phosphorbronzeblech verwendet. Die Massen in den Rädchen sind radialsymmetrisch verteilt, so dass Erschütterungen des Probenhalters nur in geringem Masse in Drehbewegungsschwankungen des Drehstabes umgewandelt werden. Da der 80 cm lange Drehstab wegen



$A_1$  fixe Achse für  $R_1$

$A_2$  fixe Achse für  $R_2$

B Probenbefestigungen

D Drehstab

P Probe

$R_1, R_2$  Rädchen

V Vorspannung

Fig. 2

Probenhalter mit Transformationssystem

des Wärmetransportes ins Heliumbad nicht beliebig steif gemacht werden kann, muss seine Aufhängevorrichtung möglichst weich gegenüber Drehbewegungen sein. Deshalb verwendeten wir hier ein Federsystem nach JONES<sup>21)</sup>, das viel weniger steif gegenüber Verdrehungen ist als ein Rädchensystem, leider aber Erschütterungen viel besser überträgt.

*Elektrischer Teil.* Fig. 3 zeigt eine Skizze des elektrischen Teils. Die Ablenkung des Lichtstrahls durch den am Drehstab befestigten Spiegel wird mit der Differentialphotozelle  $P_1$  gemessen; durch Einschalten zweier optischer Gitter in den Lichtweg kann die Empfindlichkeit beträchtlich erhöht werden. Die Spannung am Widerstand  $R$  wird mit einem Galvanometer-Verstärker nach MACDONALD<sup>22)</sup> verstärkt. Der Widerstand  $R$  und der Rückkopplungswiderstand  $F$  dienen als Unter-setzer bei der Eichung. Als Anzeigeeinstrument  $A$  wurde ein Kompensationsschreiber verwendet.

*Eichung.* Um den Absolutwert der Längenänderungen zu bestimmen, wurden diese jeweils mit einem Eichausschlag verglichen, den man durch

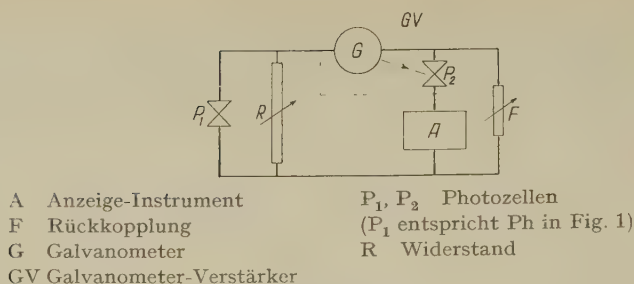


Fig. 3

Elektrischer Teil der Apparatur

Verschieben eines der beiden optischen Gitter um einen Betrag von  $\frac{1}{100}$  mm erhält. Die diesem Eichausschlag entsprechende Längenänderung kann entweder aus der Geometrie der Apparatur oder experimentell aus der bekannten thermischen Ausdehnung der Probe bei Zimmertemperatur bestimmt werden. Bei der zweiten Methode muss man zur Elimination der thermischen Ausdehnung des Probenhalters die Messung an verschiedenen Proben durchführen. Die Übereinstimmung zwischen Rechnung und Messungen war gut, so dass die einem bestimmten Ausschlag entsprechende Längenänderung mit einer Genauigkeit von 5% angegeben werden kann.

*Störeffekte.* Bei unsern Messungen traten vor allem zwei Störeffekte auf: Erschütterungen der Apparatur und ein Drift bei der Registrierung der Messungen. Fig. 4 zeigt solche registrierte Längenänderungen einer Indium-Einkristall-Probe bei 2,17° K. Die kurzzeitigen Schwankungen – verursacht durch die Vibrationen der Apparatur – konnten unter günstigen Bedingungen (Ruhe im Gebäude) sehr klein gemacht werden. Sie entsprechen Längenänderungen von weniger als 2 Å. Dabei zeigte es sich als vorteilhaft, an Stelle der flüssigen Luft im Aussendewar flüssigen

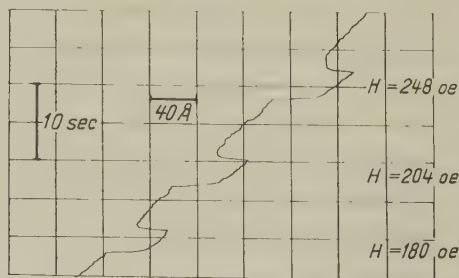


Fig. 4

Registrierte Längenänderungen einer Indium-Probe bei 2,17° K

Stickstoff zu verwenden; damit konnten die Schwankungen beträchtlich herabgesetzt werden. Für den auftretenden Drift ist eine nicht stationäre Temperaturverteilung im «Zimmertemperaturteil» der Apparatur verantwortlich. Eine Temperaturerhöhung der den Abstand zwischen Gitter und Spiegel fixierenden Grundplatte um  $1^{\circ}\text{C}$  bewirkte so eine Verlängerung des Lichtweges, die einer Längenänderung der Probe von  $2000\text{ \AA}$  entspricht. Ein vollständiger Temperatúrausgleich nach dem Abpumpen des Heliums würde aber zu lange Wartezeiten zwischen den einzelnen Messungen erfordern (mehrere Stunden), so dass ein kleiner Drift geduldet werden musste.

## 2. Proben

*Polykristalle.* Die polykristallinen Proben von Blei, Indium, Zinn und Thallium wurden durch Abschrecken des flüssigen Metalls hergestellt. Dabei zeigte es sich, dass die einzelnen Kristallite im Polykristall nicht immer über alle Richtungen verteilt orientiert waren. Die Längenänderung beim Übergang normal-supraleitend eines Polykristalls mit einer derart bevorzugten Orientierung ist nach der in Abschnitt II (S. 679) gemachten Annahme gleich der Längenänderung eines Einkristalls in einer Richtung, in welcher dieser den gleichen elektrischen Widerstand besitzt wie der Polykristall.

Verschiedene bevorzugte Orientierungen wiesen die Zinn- und Thalliumproben auf. Bei Thallium ist die Anisotropie des elektrischen Widerstandes nicht bekannt, so dass die den Polykristallen entsprechenden Orientierungen eines Einkristalls nicht bestimmt werden konnten. Für Zinn haben wir nur die Längenänderung einer einzigen Probe untersucht, da hier ausgedehnte Messungen des Druckeffektes des kritischen Magnetfeldes von GRENIER<sup>8)</sup> vorliegen. Die Messung des elektrischen Widerstandes ergab  $\varrho_{293^{\circ}\text{K}} = 1,04 \cdot 10^{-5} \Omega \text{ cm}$ . Das entspricht in einem Einkristall einem Widerstand in einer um  $67^{\circ}$  zur tetragonalen Achse geneigten Richtung. Bei Indium zeigte keine der drei untersuchten Proben eine bevorzugte Orientierung.

Mit Ausnahme der hexagonalen Phase des Lanthans besitzen alle harten Supraleiter kubische Struktur. Eine bevorzugte Orientierung der Kristallite spielt deshalb für den Druckeffekt des kritischen Magnetfeldes keine Rolle.

Bei Tantal hängt die Breite des magnetischen Überganges normal-supraleitend stark von der Vorbearbeitung des Materials ab<sup>23)</sup>. Zwei Proben (JOHNSON, MATTHEW & Co.; FANSTEEL) wiesen einen sehr breiten magnetischen Übergang auf und zeigten fast keinen Meissnereffekt. Bei der dritten Probe (BUDNIK) war der magnetische Übergang sehr scharf. Die Messung der Sprungkurve ergab ein  $T_c$  von  $4,38^{\circ}\text{K}$ , wogegen



reinstes Material eine kritische Temperatur von  $4,48^\circ\text{K}$  haben sollte\*). Für Vanadium wurden zwei sehr reine Proben von MÜLLER<sup>24)</sup> untersucht.

Bei Lanthan existieren zwei supraleitende Phasen, eine kubisch flächenzentrierte (f. c. c.) mit einer Sprungtemperatur von  $5,9^\circ\text{K}$  und eine hexagonale (h. c. p.) mit  $T_c = 4,8^\circ\text{K}$ <sup>25)</sup>26). Durch Tempern kann die hexagonale Phase zum Verschwinden gebracht werden, während es bis jetzt nicht gelang, rein hexagonales Material herzustellen<sup>25)</sup>. Das von uns untersuchte La I mit  $T_c = 4,25^\circ\text{K}$  und  $H_0 = 1550$  Oersted stellt ein Gemisch der beiden Phasen dar, La II mit  $T_c = 4,55^\circ\text{K}$  und  $H_0 = 1720$  Oersted (erhalten durch dreitägiges Tempern bei  $600^\circ\text{C}$ ) besitzt vorwiegend kubische Struktur. Die relativ tiefen Sprungpunkte erklären sich aus dem bekannten Legierungseffekt bei Lanthan mit andern Seltenen Erden. Danach genügen ganz kleine Verunreinigungen um die kritische Temperatur beträchtlich zu erniedrigen<sup>27)</sup>.

*Einkristalle.* Die Indium-Einkristalle wurden mit der gewöhnlichen Zonenschmelzmethode hergestellt. Zur Bestimmung der Kristallorientierung diente einerseits ein optisches Goniometer und andererseits die Anisotropie des elektrischen Widerstandes. Letztere ist jedoch sehr klein ( $\rho_{\perp}/\rho_{\parallel} = 1,05$ ) und gibt nur eine rohe Abschätzung der Orientierung. Sie ist aber wegen der kleinen Abweichung der tetragonalen Struktur von der kubischen ( $c/a = 1,09$ ) nützlich zur Bestimmung der tetragonalen Achse.

Das Quecksilber wurde in flüssigem Zustande auf die in Figur 5 skizzierte Art in die Apparatur eingebaut. Es befindet sich dabei in einem

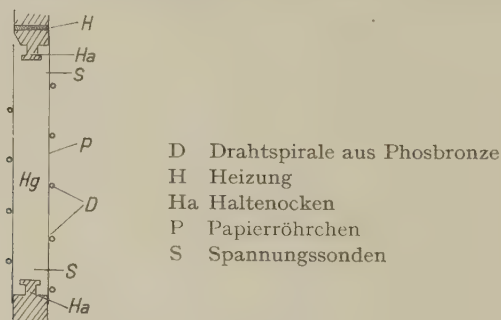


Fig. 5  
Quecksilberprobe

Papierröhrchen, das mit einer Drahtspirale aus Phosphorbronze verstärkt ist. So erhält man bei Zimmertemperatur eine genügende Steifheit, die aber bei Heliumtemperatur im Vergleich zum festen Quecksilber nicht mehr in Betracht fällt. Die beiden Haltenocken gewährleisten einen guten

\*) Private Mitteilung.

mechanischen Kontakt zwischen Probe und Probenhalter. Beim langsamen Vorkühlen der Apparatur mit flüssigem Stickstoff bildeten sich die Einkristalle, deren Orientierung wir durch Messung des elektrischen Widerstandes ( $\varrho_{\perp}/\varrho_{\parallel} = 1,32$ ) bestimmten. Zwei der so erhaltenen Proben ergaben einen Widerstand von  $\varrho_{\parallel}$  beziehungsweise  $\varrho_{\perp}$ , waren also wirkliche Einkristalle. Das lässt vermuten, dass auch die übrigen Proben Einkristalle sind.

*Kritische Felder.* Zur Berechnung des Druckkoeffizienten des kritischen Magnetfeldes aus der Längenänderung des Supraleiters beim Übergang normal-supraleitend muss  $H_c$  bekannt sein (Gleichung (1)). Für Supraleiter mit scharfem magnetischem Übergang kann  $H_c$  aus dem Einsatzzpunkt von  $\Delta l$  bei den Längenänderungsmessungen abgelesen werden (Fig. 6). Für unscharfe Übergänge wurden die Feldkurven mit der Induktionsmethode von SHOENBERG<sup>28)</sup> gemessen\*). Als  $H_c$  wurde dabei jeweils das Feld beim ersten Eindringen angenommen.  $H_0$ ,  $T_c$  und  $f'(1)$  sind in Tabelle II zusammengestellt.

Tabelle II  
Kritische Daten der untersuchten Supraleiter

	In	Sn	Pb	Hg	Tl	Al	Cd	Ta I	Ta II	V	La I	La II
$T_c$ (°K)	3,37	3,73	7,18	4,15	2,38	1,30	0,54	4,38	4,37	5,30	4,25	4,55
$H_0$ (Oe)	269	304,5	802,6	426	170,7	98,5	28,5	848	743	1080	1550	1720
$-f'(1)$	1,83	1,85	2,12	2,0	1,95	1,85	2,0	1,80	2,0	1,92	2,0	2,0

### 3. Feldabhängigkeit der Längenänderungen

Bei einem idealen magnetischen Übergang normal-supraleitend sollte die Längenänderung für  $H = H_c$  sprunghaft von null auf dem Betrag  $\Delta l$  anwachsen. Die Experimente zeigen, dass dies keineswegs immer der Fall ist. Ein idealer Übergang wurde einzig bei Tantal von Budnik, Quecksilber, Thallium, polykristallinen Indium und Zinn und den dünnen Blei-Proben ( $\varnothing < 3$  mm) beobachtet.

Fig. 6 gibt einen Überblick über die verschiedenen auftretenden Abweichungen.  $\Delta l$  ist dabei die dem gemessenen Ausschlag entsprechende Längenänderung in willkürlichen Einheiten und  $\Delta l^*$  die jeweils für Gleichung (1) verwendete. Kurve A zeigt den Idealfall. Bei Blei und Indium tritt wohl ein Sprung in  $\Delta l$  auf, das Verhalten in unter- oder überkritischen Feldern entspricht aber nicht diesem Idealfall. Die Abweichung für die Bleiprobe (Kurve B) kommt nur in unterkritischen Feldern vor ( $\Delta l \sim H^2$ ) und steht daher sicher mit der Supraleitfähigkeit der Probe in Zusammenhang. Es wurde an anderer Stelle versucht, diese Feldabhän-

\*) Herrn GYGAX sei für die Überlassung der Apparatur herzlich gedankt.

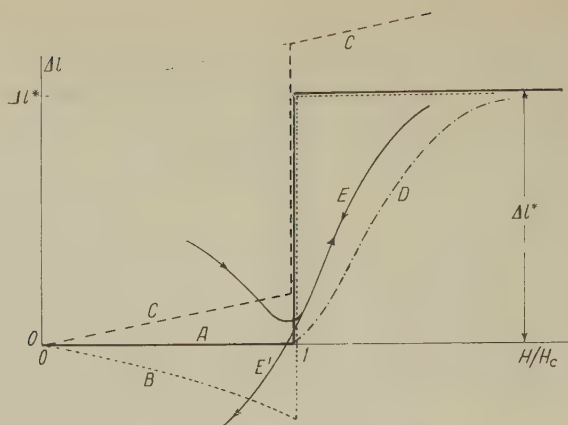


Fig. 6

Feldabhängigkeit der Längenänderungen

gigkeit von  $\Delta l$  mit Hilfe des Magnetostraktionseffektes zu erklären, was nur unvollständig gelang<sup>33</sup>). Für Indium (Kurve C) zeigte  $\Delta l$  den gleichen linearen Anstieg in unter- und überkritischen Feldern. Der Grund dafür sind wahrscheinlich Kräfte von Feldinhomogenitäten auf die relativ stark paramagnetischen (oder eventuell ferromagnetische Verunreinigungen enthaltenden) Probenbefestigungen aus Messing.

Ganz anders liegen die Verhältnisse bei den harten Supraleitern (Kurven D und E), bei denen der Übergang normal-supraleitend unscharf ist. Lanthan (Kurve D) zeigt ausser dem stetigen Anwachsen von  $\Delta l$  für  $H > H_c$  – wie das der breite magnetische Übergang erwarten lässt – keine Besonderheiten. Bei Vanadium dagegen (Kurven E und E') ist das Verhalten in unterkritischen Feldern recht merkwürdig. Für  $H < H_c$  und ohne eingefrorenes Feld ist  $\Delta l$  positiv, verschwindet bei  $H = H_c$  weitgehend und wächst für  $H > H_c$  auf dem Betrag  $\Delta l^*$  an. Verkleinert man das Feld, so nimmt  $\Delta l$  ab, geht ungefähr bei  $H_c$  durch null und wird dann negativ. Ein ähnlicher Effekt wurde auch bei Ta I beobachtet, jedoch nicht in Lanthan, wo das eingefrorene Feld höchstens 25% betrug. Dies liesse sich mit Kräften von Feldinhomogenitäten auf die Probe erklären, wobei die Suszeptibilität der Probe nach aussen zuerst negativ, nachher – der eingefrorenen Feldern wegen – positiv erscheint.

Die Feldabhängigkeit von  $\Delta l$  wurde nur bei Indium, wo  $\Delta l$  keine Sättigung mit dem Felde zeigt, bei jeder Messung bestimmt. In den andern Fällen genügte es,  $\Delta l$  in einem Felde, das grösser als das kritische war – bei den harten Supraleitern ungefähr dreimal so gross – zu messen. Die Proben, die eingefrorene Magnetfelder aufwiesen, wurden nach jeder Messung über die kritische Temperatur erwärmt.

In Fig. 7 ist zum Vergleich  $\Delta l$  und der Anteil an normalleitendem Material,  $V_n/V$ , von La I bei  $3,11^\circ\text{K}$  gegenüber dem angelegten Magnetfeld aufgezeichnet.  $V_n/V$  wurde aus der gemessenen Magnetisierung berechnet. Die beiden Kurven sollten natürlich zusammenfallen. Die Verschiebung lässt sich wie folgt erklären: Bei dem untersuchten Lanthan

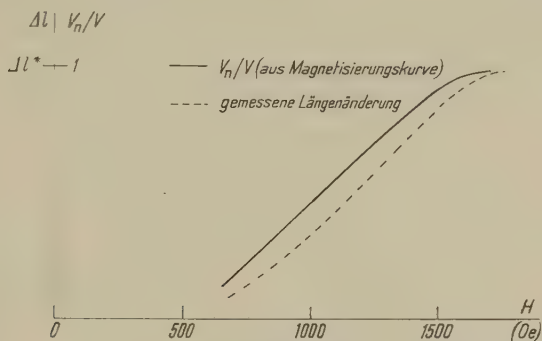


Fig. 7

dringt bedeutend mehr Feld ein, wenn die Probe Erschütterungen ausgesetzt ist. Diese sind aber bei der Messung der Magnetisierung mit der verwendeten Induktionsmethode unvermeidlich. Für ein bestimmtes Magnetfeld ist daher ein grösserer Teil des Lanthans normalleitend als bei der Messung der Längenänderung, wo die Probe praktisch vibrationsfrei ist.

#### 4. Bestimmung von $g$ , $h$ und $s$

Die durch Gleichung (4) definierten Grössen  $g_\theta$ ,  $h_\theta$  und  $s_\theta$  können im Prinzip aus dem bei zwei verschiedenen Temperaturen bestimmten  $\partial H_c/\partial p_\theta$  mit Hilfe von Gleichung (3) berechnet werden. Dabei müssen aber sowohl  $f(t)$  als auch  $f'(t)$  für die betreffenden Temperaturen sehr genau bekannt sein. Dies ist leider nicht bei allen Supraleitern der Fall. Werden aber  $g_\theta$ ,  $h_\theta$  und  $s_\theta$  direkt aus den Definitionsgleichungen bestimmt, so braucht man von  $f(t)$  lediglich  $f'(1)$  zu kennen. Um die für diese Methode notwendigen Werte von  $\partial H_c/\partial p_\theta$  bei  $T = T_c$  und  $T = 0^\circ\text{K}$  zu erhalten, wurde ein Näherungsverfahren angewendet.

Das kritische Feld hängt in erster Näherung quadratisch von der Temperatur ab. Dann ist nach Gleichung (3)  $\partial H_c/\partial p_\theta$  eine lineare Funktion von  $t^2$  und kann leicht auf  $T = T_c$  und  $T = 0^\circ\text{K}$  extrapoliert werden. Ein Iterationsverfahren bei Indium und Blei, wo  $f(t)$  sehr genau bekannt ist, zeigte, dass der durch die quadratische Näherung von  $f(t)$  verursachte Fehler der extrapolierten Druckkoeffizienten des kritischen Magnetfeldes klein war.

## IV. Resultate

In Fig. 8 sind die gemessenen (für Aluminium und Cadmium aus den Druckmessungen von OLSEN<sup>34)</sup> beziehungsweise ALEXSEEVSKII und GAIDUKOV<sup>31)</sup> berechneten) Volumenänderungen beim Übergang normal-supraleitend für alle untersuchten Supraleiter als Funktion der Temperatur dargestellt. In der Nähe von  $T_c$  und des absoluten Nullpunktes wurden die Volumenänderungen aus der Extrapolation von  $\partial H_c / \partial p$  berechnet

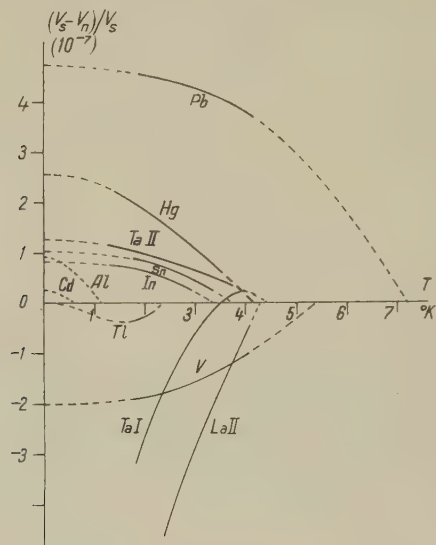


Fig. 8

Temperaturabhängigkeit der Volumenänderung  
beim Übergang normal-supraleitend

(diese Teile der Kurven sind gestrichelt gezeichnet). Bei den weichen Supraleitern ist das Volumen im normalleitenden Zustand im allgemeinen kleiner als im supraleitenden (Ausnahme: Tl). Bei den Übergangsmetallen Tantal, Vanadium und Lanthan besitzt die normalleitende Phase das grössere Volumen (Ausnahme: TaI bei  $T > 3,5^\circ\text{K}$  und TaII). Die Tabellen III und IV geben eine Zusammenstellung der Werte von  $g$ ,  $h$  und  $s$ . Ein Teil der Resultate wurde bereits in früheren Arbeiten veröffentlicht<sup>33) 35-41)</sup>.

*Temperaturabhängigkeit und Anisotropie von  $\partial H_c / \partial p_\theta$*

*Polykristalle weicher Supraleiter.* Fig. 9 zeigt den Temperaturverlauf des Druckkoeffizienten des kritischen Magnetfeldes der weichen Supraleiter in polykristallinem Zustand. Vergleichsweise sind die Resultate an Aluminium von OLSEN und Cadmium von ALEXSEEVSKII angegeben. Die



Tabelle III  
Einfluss von hydrostatischem Druck auf  $H_c$ ,  $\gamma$ ,  $H_0$  und  $T_c$

		In	Sn	Pb	Hg	Tl	Al	Cd	TaI	TaII	V	La
$-\partial H_c / \partial p$ ( $10^{-9}$ Oe dyn $^{-1}$ cm $^2$ )	$T = 0^\circ \text{K}$	3,6	4,5	6,3	7,8	0	3,1	1,3	-7	2,1	-2,7	-5,6
	$T = T_c$	6,6	7,2	11,1	5,7	-1,8	4,8	3,2	4	2,1	-4,1	-1,2
	$g$	1	1,8	1,8	10,5	4,3	8	-9	-44	5,9	0,6	-3,4
	$h$	5,4	6,6	3,2	8,3	0	21	19,5	-17	5,9	-3,8	-2,2
	$s$	5,4	6,9	2,8	3,0	-1,6	17	24,5	5	3,0	-3,5	-0,5

Tabelle IV

	In			Sn			Hg		
		$\perp$	$\sim^*$		$\perp$	$\sim$		$\perp$	$\sim$
$T = 0^\circ \text{K}$	3,4	0,1	3,6	3,8	0,2	4,4	0,9	3,4	7,7
$-\partial H_c / \partial p_\theta$ ( $10^{-9}$ Oe dyn $^{-1}$ cm $^2$ )	6,2	0,2	6,6	6,5	0,3	7,1	3,9	0,9	5,7
$T = T_c$	0,1	0	0	2,1	0,1	0,8	-22,8	14	10,6
$g_\theta$	0,1	0	0	2,8	1,2	1,7	9,7	11	10
$g'_\theta$	20	0,5	5,4	18,3	1,0	6,6	9,8	8,9	8,3
$h_\theta$	5,3	5,0	5,1	12,3	5,0	6,7	8,0	8,5	8,6
$h'_\theta$	20	0,5	5,4	19	1,0	6,9	21	1,0	3,0
$s_\theta$	5,3	5,0	5,1	13,2	5,6	7,5	4,1	3,0	3,4

\*)  $\sim$  bedeutet hydrostatischen Druck oder sinngemäss gleichmässige Deformation.

in erster Näherung geforderte quadratische Temperaturabhängigkeit von  $\partial H_c / \partial p$  ist überall innerhalb der Fehlergrenzen erfüllt. Für Zinn und Quecksilber ist  $\partial H_c / \partial p$  von einem Einkristall unter hydrostatischem Druck aufgetragen.

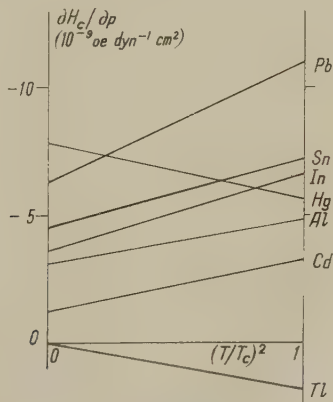


Fig. 9

Temperaturabhängigkeit von  $\partial H_c / \partial p$  von Polykristallen weicher Supraleiter

Bei Blei kann  $\partial H_c / \partial p$  nur in einem kleinen Bereich der reduzierten Temperatur  $t$  erhalten werden ( $T_c = 7,18^\circ \text{K}$ ). Die Extrapolation auf  $T = T_c$  wird daher mit einem ziemlich grossen Fehler verbunden sein. Ähnliches gilt für Thallium mit einer kritischen Temperatur von  $2,37^\circ \text{K}$ . Hier wird die Extrapolation auf  $T = 0^\circ \text{K}$  fraglich.

Indium, Zinn und Blei zeigen bezüglich  $\partial H_c / \partial p$  ein ähnliches Verhalten. Dies kommt auch in den kleinen Werten für  $g$  in Tabelle III zum Ausdruck. Eine zweite Gruppe bilden Quecksilber und Aluminium. Hier wird der Druckkoeffizient des kritischen Magnetfeldes im Gegensatz zu den drei eben erwähnten Supraleitern mit abnehmender Temperatur grösser; damit erhält man für  $g$  sehr grosse Werte. Thallium und Cadmium – beide mit hexagonaler (h. c. p.) Struktur – können in keiner der beiden Gruppen untergebracht werden: bei Thallium ist  $\partial H_c / \partial p$  positiv, bei Cadmium ist  $g$  negativ.

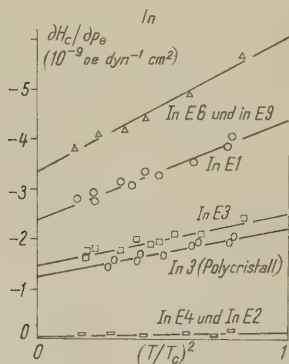


Fig. 10

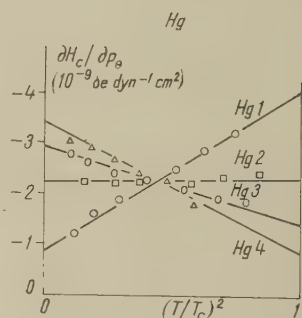


Fig. 11

Temperaturabhängigkeit von  $\partial H_c / \partial p_0$  für verschiedene Kristallorientierungen

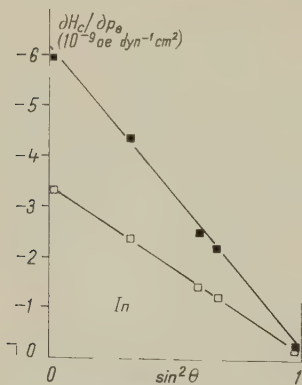


Fig. 12

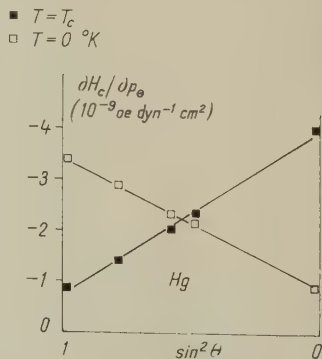


Fig. 13

Winkelabhängigkeit von  $\partial H_c / \partial p_0$

*Einkristalle weicher Supraleiter.* Fig. 10 und 11 stellen die Temperaturabhängigkeit von  $\partial H_c / \partial p_\theta$  der verschiedenen Indium- und Quecksilber-einkristalle dar; Fig. 12 und 13 zeigen die Winkelabhängigkeit von  $\partial H_c / \partial p_\theta$  für  $T = 0^\circ \text{K}$  und  $T = T_c$ . Beide Supraleiter genügen sowohl dem geforderten quadratischen Temperaturverlauf als auch der durch Gleichung (6) verlangten Winkelabhängigkeit des Druckkoeffizienten.

$\partial H_c / \partial p$  von Indium verhält sich im wesentlichen gleich wie das von GRENIER<sup>9)</sup> untersuchte Zinn. Charakteristisch ist für beide das Verschwinden des Druckkoeffizienten des kritischen Magnetfeldes für Drucke senkrecht zur tetragonalen Achse. Die gleiche Anisotropie wie bei  $\partial H_c / \partial p_\theta$  tritt natürlich auch bei den  $h_\theta$  und  $s_\theta$  auf; über diejenige von  $g_\theta$  kann nichts gesagt werden, da der Fehler zu gross ist (auf alle Fälle grösser als eine möglicherweise auftretende Anisotropie). Die Anisotropie von  $h_\theta$  und  $s_\theta$  ist aber nicht durch den Volumeneffekt (Änderung von  $H_0$ ,  $T_c$  und  $\gamma$  mit dem Volumen) selber, sondern durch diejenige der elastischen Konstanten verursacht. Sie verschwindet beim Übergang zu  $g'_\theta$ ,  $h'_\theta$  und  $s'_\theta$  bei Indium vollständig und bei Zinn auf alle Fälle weitgehend (Tabelle IV).

Quecksilber zeigt ein ganz anderes Bild als Zinn und Indium. Die Temperaturabhängigkeit von  $\partial H_c / \partial p_\theta$  ist für Drucke parallel und senkrecht zur Symmetrieachse gänzlich verschieden. Die grosse Anisotropie in den  $g_\theta$ ,  $h_\theta$  und  $s_\theta$  verschwindet auch hier beim Übergang zu den  $g'_\theta$ ,  $h'_\theta$  und  $s'_\theta$ .

Wie bereits erwähnt, waren die Thalliumproben keine eigentlichen Einkristalle. Sie bestanden aus polykristallinem Material mit bevorzugter Orientierung, die nicht absolut, sondern nur durch den Widerstand  $\varrho$  angegeben werden kann. Zwischen  $\varrho(\theta)$  und  $\partial H_c / \partial p_\theta$  besteht ein linearer Zusammenhang, denn für  $\varrho(\theta)$  gilt ebenfalls  $\varrho(\theta) = \varrho_{\parallel} \cos^2 \theta + \varrho_{\perp} \sin^2 \theta$ . In Fig. 14 ist  $\partial H_c / \partial p_\theta$  für  $T = T_c$  gegen  $\varrho$  aufgetragen. Überraschend ist, dass  $\partial H_c / \partial p_\theta$  mit der Kristallorientierung das Vorzeichen wechselt. Nach Untersuchungen von CODY<sup>13)</sup> sollte der Druckkoeffizient für Drucke

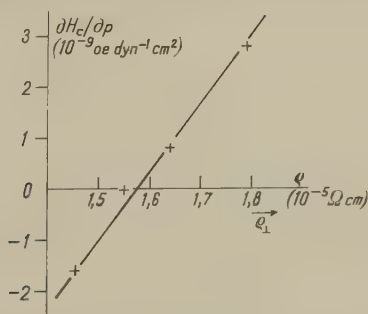


Fig. 14

 $\partial H_c / \partial p$  von Thallium

parallel zur Symmetrieachse negativ sein. Ein Übergang zu  $g'_0$ ,  $h'_0$  und  $s'_0$  ist hier nicht möglich, da sowohl die elastischen Konstanten als auch  $\varrho_{\parallel}$  und  $\varrho_{\perp}$  nicht bekannt sind. Es kann deshalb nicht entschieden werden, ob die Anisotropie des Volumeneffektes von  $\gamma$ ,  $T_c$  und  $H_0$  – wie bei Indium, Zinn und Quecksilber – ebenfalls weitgehend verschwindet.

*Harte Supraleiter.* Da die harten Supraleiter alle kubische Struktur (mit Ausnahme der hexagonalen Phase des Lanthans) haben, wurden nur Messungen an Polykristallen durchgeführt (Fig. 15). Der unscharfe magnetische Übergang normal-supraleitend und das Einfrieren der Felder bedingen meist eine wesentlich kleinere Genauigkeit der Ergebnisse als bei den weichen Supraleitern. Ferner sind die Messungen an der gleichen Probe zwar reproduzierbar; misst man aber an verschiedenen Proben, so treten erhebliche Diskrepanzen auf.

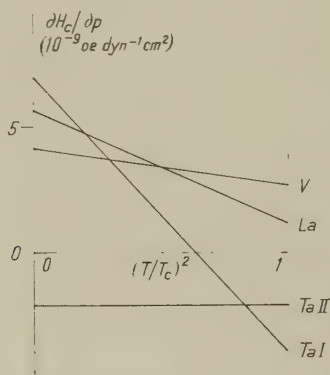


Fig. 15  
Temperaturabhängigkeit von  $\partial H_c / \partial p$  der harten Supraleiter

Ta I verhält sich sehr merkwürdig, indem  $\partial H_c / \partial p$  als Funktion der Temperatur das Vorzeichen wechselt. Bei Ta II ist dies nicht mehr der Fall; ebenfalls ist hier der Druckkoeffizient des kritischen Magnetfeldes viel kleiner als bei Ta I. Dieses sehr unterschiedliche Verhalten macht sich vor allem bei den Werten von  $g$  und  $h$  bemerkbar.

Fig. 16 und 17 zeigen die Volumenänderung beim Übergang normal-supraleitend und den Druckkoeffizienten des kritischen Magnetfeldes der beiden untersuchten Lanthanproben. Dabei überrascht, dass der Anteil an hexagonalem Lanthan in La I beim Druckkoeffizienten keine grösseren Abweichungen von der vorwiegend kubische Struktur aufweisenden Probe hervorruft. Die in Fig. 8 und 15 aufgezeichneten Kurven für Lanthan sind diejenigen von La II.

Das Verhalten von Vanadium wurde in einer früheren Arbeit ausführlich beschrieben<sup>39)</sup>.

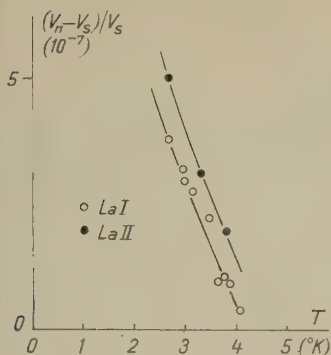


Fig. 16

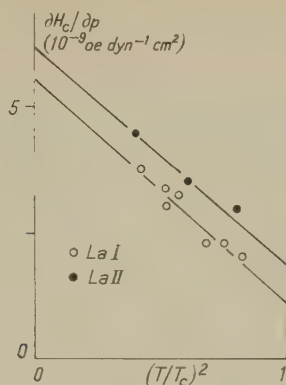


Fig. 17

## 2. Vergleiche mit andern Messungen\*)

In diesem Abschnitt sollen unsere Resultate mit andern Messungen verglichen und damit die wahrscheinlichsten Werte von  $g$  bestimmt werden. Wir dürfen uns dabei auf  $g$  allein beschränken, da die Unterschiede von  $h$  und  $s$  in den verschiedenen Arbeiten meist klein sind. In Tabelle VI sind diese  $g$ -Werte der bis jetzt untersuchten Supraleiter zusammengestellt.

Bei Blei hat neuerdings Mapother\*\*) sehr genaue Werte des Druckkoeffizienten des kritischen Magnetfeldes mit der direkten Methode erhalten. Der Vorteil seiner Messungen liegt darin, dass  $\partial H_c / \partial p$  im ganzen supraleitenden Gebiet gemessen werden kann. Dies macht die Extrapolation auf  $T = T_c$  wesentlich genauer. Er erhält  $(\partial H_c / \partial p)_{T=T_c} = -10^{-8}$ ,  $(\partial H_c / \partial p)_{T=0^\circ K} = -7 \cdot 10^{-9}$  Oersted  $\text{dyn}^{-1} \text{cm}^2$  und  $g = 3$ .

Der Druckkoeffizient des kritischen Magnetfeldes von Indium wurde auch von KAN, LASAREV und SUDOVSTOV<sup>42)</sup> und MUENCH<sup>6)</sup> für Polykristalle sowie von CODY<sup>13)</sup> an einem parallel zur tetragonalen Achse orientierten Einkristall untersucht. Diese Messungen sind in guter Übereinstimmung mit unsern<sup>37)</sup>.

An Quecksilber-Einkristallen wurden direkte Messungen von  $\partial H_c / \partial p_\theta$  von GRENIER<sup>9)</sup> durchgeführt. Die Fehler seiner Messungen sind leider ziemlich gross, da die Einkristalle teilweise durch das Experiment zerstört wurden. Es ist deshalb nicht erstaunlich, dass die Übereinstimmung mit unsern Resultaten – vor allem für  $g$  – nur qualitativ ist. JENNINGS und SWENSON<sup>10)</sup> erhalten für den Druckkoeffizienten der kritischen Temperatur  $-3,6 \cdot 10^{-5}^\circ \text{K/atm}$ . Das ist etwas grösser als der Wert

\*) Vollständige Zusammenstellung siehe J. L. OLSEN und H. ROHRER, *Helv. Phys. Acta* 33, Heft 7 (1960).

\*\*) Private Mitteilung.



$-3,0 \cdot 10^{-5} \text{ K/atm}$ , berechnet aus Greniers und unsern Messungen von  $\partial H_c / \partial p$ . Der Grund für diese Unstimmigkeit ist wahrscheinlich der, dass die von JENNINGS und SWENSON benützten Proben keine wirklichen Polykristalle waren<sup>10)</sup>.

Von Thallium wurde vor allem  $\partial T_c / \partial p$  und dessen Druckabhängigkeit in verschiedenen Arbeiten untersucht<sup>4)5)10)13)</sup>. Unsere Messungen von  $\partial H_c / \partial p$  stimmen mit diesen Resultaten überein. Der Vorzeichenwechsel von  $\partial H_c / \partial p$  bei  $T = T_c$  als Funktion der Kristallorientierung wird durch die Arbeit von CODY<sup>13)</sup> bestätigt; er erhält jedoch eine andere Temperaturabhängigkeit des Druckkoeffizienten des kritischen Magnetfeldes. Diese Unterschiede mögen davon herrühren, dass die sehr kleinen Längenänderungen beim Übergang normal-supraleitend in beiden Fällen an der Grenze der Empfindlichkeit der Apparatur lagen.

Bei Tantal hängen die supraleitenden Eigenschaften sehr stark vom Zustand des Materials ab. Dies zeigt sich ebenfalls deutlich beim Druckkoeffizienten des kritischen Magnetfeldes. Ta I (breiter magnetischer Übergang) und Ta II (scharfer Übergang) liefern ganz verschiedene Ergebnisse. Unsere Messungen von Ta I, die  $\partial T_c / \partial p = -1,2 \cdot 10^{-5} \text{ K/atm}$  ergeben, sind in guter Übereinstimmung mit den Untersuchungen an ähnlichem Material von FISKE<sup>43)</sup> und HATTON<sup>7)</sup>. Sie erhalten  $\partial T_c / \partial p = -1,1 \cdot 10^{-5} \text{ K/atm}$  beziehungsweise  $-1,2 \cdot 10^{-5} \text{ K/atm}$ . Bei Ta II ergeben unsere Messungen einen beträchtlich kleineren Wert für die Änderung der kritischen Temperatur mit dem Druck:  $\partial T_c / \partial p = -0,6 \cdot 10^{-5} \text{ K/atm}$ . JENNINGS und SWENSON<sup>10)</sup> erhielten für eine Probe mit ebenfalls sehr schmalen magnetischen Übergang  $\partial T_c / \partial p = -0,26 \cdot 10^{-5} \text{ K/atm}$ . Die kritische Temperatur dieser Probe war erstaunlich niedrig ( $T_c = 4,30^\circ \text{ K}$ ). Trotz dieser eher schlechten Übereinstimmung mit unsern Messungen erkennt man, dass die kritische Temperatur von Tantal mit schmalen magnetischen Übergang durch einen Druck bedeutend weniger beeinflusst wird.

### 3. Fehler

In Tabelle III und IV sind der Übersicht halber keine Fehlergrenzen angegeben. Die Fehlerquellen wirken sich bei allen untersuchten Supraleitern ungefähr gleich auf  $g$ ,  $h$  und  $s$  aus. Sie sind: Streuung der Messpunkte, Näherung in der Extrapolation von  $\partial H_c / \partial p$ , Unsicherheiten von  $f'(1)$ , Eichung und die verwendeten Elastizitätskonstanten.

Am einfachsten können die relativen Fehler von  $h$  und  $s$  angegeben werden. Es handelt sich dabei nur um eine rohe Abschätzung. Die systematischen Abweichungen (Eichung, Elastizitätskonstanten und zum Teil auch die Näherung in der Extrapolation) verursachen einen relativen Fehler von 10%; die übrigen (Streuung der Messpunkte,  $f'(1)$ ) einen sol-

chen von 2-5%. Ausnahmen davon sind Blei (ungenau Extrapolation), Thallium (sehr kleine Längenänderungen) und Ta I (grosse Streuung der Messpunkte).

Für  $g$  ist es nur sinnvoll, den absoluten Fehler anzugeben, und zwar ist  $\Delta g = 2(\Delta h + \Delta s)$ . Für kleine Werte von  $g$  kommen für diese  $\Delta h$  und  $\Delta s$  die systematischen Fehler nicht in Betracht, da sie sich auf  $h$  und  $g$  gleich auswirken.

Tabelle V gibt eine Zusammenstellung der relativen Fehler von  $h$  und  $s$ .

Tabelle V  
Relative Fehler von  $h$  und  $s$  in Tabelle III und IV in %

	In	Sn	Pb	Hg	Tl	Al	Ta I	Ta II	Va	La
Systematisch	10	10	10	20	10	20	10	10	10	10
Zufällig	10	3	3	5	10	20	20	5	5	10

Tabelle VI  
Mittelwerte von  $g$

	In	Sn	Pb	Hg	Tl	Al	Cd	Ta	Va	La
$g$	$1 \pm 0,5$	$2,7 \pm 0,5$	$3,0 \pm 1,0$	$10 \pm 3$	$3,3 \pm 1$	$8 \pm 4$	$-9 \pm 3$	$6 \pm 2$	$-0,6 \pm 0,5$	$-3,4$

V. Einfluss der Änderung des Atomabstandes  
auf die Supraleitung

MATTHIAS<sup>44)</sup> erhielt aus dem Vergleich der kritischen Temperaturen verschiedener Supraleiter mit gleicher Valenz und Kristallstruktur aber ungleichem Atomvolumen für die Änderung der kritischen Temperatur mit dem Volumen folgende Regel<sup>44)</sup>:

$$T_c \sim \frac{v^K}{m} \quad 4 < K < 5$$

(9)

$v$  bedeutet dabei das Atomvolumen und  $m$  die Atommasse. Der Exponent  $K$  entspricht unserm  $s$  ( $s = \partial \log T_c / \partial \log v$ ). Gleichung (9) gibt nur eine rohe Abschätzung von  $s$ , da der Isotopeneffekt mit  $T_c \sim m^{-1}$  (an Stelle von  $T_c \sim m^{-1/2}$ ) und der Einfluss der Elektronenkonfiguration auf das periodische Potential gar nicht berücksichtigt wurde. Besonders der zweite Punkt ist der Grund für die schlechte Übereinstimmung von Gleichung (9) mit der experimentell bestimmten Volumenabhängigkeit der kritischen Temperatur. Dies zeigen sehr deutlich die beiden Reihen Ti-Zr-Hf und Ta-V-Nb. Setzt man den Isotopeneffekt in seiner richtigen Form in Gleichung (9) ein, so hängt der Wert von Hf sehr davon ab, mit welchem andern Supraleiter man Hafnium vergleicht. Bei Hf-Ti erhält man

$K = 1,2$ , während Hf Zr  $K = 8$  ergibt. Ähnliche Unterschiede treten auch bei der Reihe Ta-V-Nb auf. Hier kann  $K$  sogar das Vorzeichen wechseln.

Nach den neueren Theorien ist die Elektron-Phonon-Wechselwirkung verantwortlich für das Auftreten der Supraleitung. Die Verschiebung von  $T_c$  durch eine Änderung des Volumens des Supraleiters lässt sich damit auf den Einfluss einer Volumenänderung auf die Elektron-Phonon-Wechselwirkung zurückführen. Nach der Bardeen-Cooper-Schrieffer-Theorie der Supraleitung ist die kritische Temperatur gegeben durch<sup>45)</sup>

$$T_c \sim \hbar\omega \cdot \exp\left(-\frac{1}{NV}\right) \quad (10)$$

$\omega$  bedeutet dabei eine charakteristische Phononenfrequenz,  $N$  die Zustandsdichte am absoluten Nullpunkt und  $V$  die für die Supraleitung verantwortliche Elektron-Elektron-Wechselwirkungskonstante. Durch Ableiten von Gleichung (10) nach dem Volumen erhält man

$$s = -c + \frac{1}{NV} (g + \varphi) \quad (11)$$

$c$  ist die Grüneisenkonstante ( $c = -\partial \log \omega / \partial \log v$ ),  $\varphi$  bedeutet die Änderung von  $V$  mit dem Volumen ( $\varphi = \partial \log V / \partial \log v$ ).  $NV$  bestimmt sich aus Gleichung (10), wobei die Wahl der charakteristischen Phononenfrequenz nicht kritisch ist. Für  $\omega$  wurde nach PINES<sup>46)</sup>  $3/5(k\theta/\hbar)$  gewählt\*).

Um nach Gleichung (11) die Änderung der kritischen Temperatur mit dem Volumen zu erhalten, muss noch  $\varphi$  bekannt sein. MOREL<sup>47)</sup> berechnete die Elektron-Elektron-Wechselwirkung und deren Abhängigkeit vom Volumen für verschiedene Supraleiter. Er erhält lediglich für den Coulombterm der Elektron-Elektron-Wechselwirkung eine schwache Abhängigkeit vom Volumen, während sich die Elektron-Phonon-Wechselwirkung als konstant erweist. In Tabelle VII sind die berechneten Werte von  $\varphi$  ( $\varphi_{\text{ber}}$ ) und die damit nach Gleichung (11) bestimmte Änderung der kritischen Temperatur mit dem Volumen ( $s_{\text{ber}}$ ) angegeben. Wie man sieht, ist die Übereinstimmung von  $s_{\text{ber}}$  mit den experimentell erhaltenen Werten von  $s$  ( $s_{\text{ex}}$ ) bei Indium, Zinn und Blei befriedigend, bei Quecksilber, Thallium und Aluminium aber schlecht.

Weiter sind in Tabelle VII die Werte von  $\varphi$ , die man aus der experimentellen Bestimmung von  $s$  erwartet, angegeben ( $\varphi_{\text{ex}}$ ). Im Gegensatz zum Ergebnis des Morelschen Berechnungsverfahrens muss danach eine beträchtliche Volumenabhängigkeit der Elektron-Elektron-Wechselwirkungskonstanten angenommen werden um die Änderung von  $T_c$  mit dem Volumen zu erklären.

\*)  $\theta$  bedeutet die Debye-Temperatur.

Tabelle VII

	In	Sn	Pb	Hg	Tl	Al	Cd	Ta II	V	La
$s_{ex}$	5,2	6,6	3,1	3,0	-1,5	17	24,5	3	-3,5	-0,5
$s_{ber}$	2,6	8,0	4,8	24	9,0	50	—	—	—	—
$\varphi_{ber}$	0,1	0,1	0,1	0,2	0,1	0,5	—	—	—	—
$\varphi_{ex}$	1,3	-0,3	-0,7	-8	-3	5	15	—	—	—
$g_{ex}$	1,0	2,7	3	10	3,3	8	-9	6	-0,6	-3,4
$(\varphi + g)_{ex}$	2,2	2,4	2,3	2,0	0,3	3	6	1,5	-0,5	1

Bildet man die Summe von  $g$  und  $\varphi$ , so zeigt sich, dass für alle untersuchten weichen Supraleiter mit Ausnahme von Thallium und Cadmium gilt

$$2 \leq \varphi + g = \frac{\partial \log NV}{\partial \log v} \leq 3 \quad (11a)$$

das heisst die Volumenabhängigkeit der totalen Elektron-Elektron-Wechselwirkung ist nahezu konstant, und zwar ist  $g + \varphi \approx c$  ( $c$  = Grüneisenkonstante). Die Resultate von Thallium und Cadmium würden möglicherweise auch besser mit Gleichung (11 a) übereinstimmen, wenn an Stelle von  $s$  die Werte von  $s'$  in Gleichung (11) eingesetzt werden. Letztere können aber leider für diese beiden Supraleiter nicht berechnet werden. Bei Cadmium kann dazu noch eine bevorzugte Orientierung der einzelnen Kristallite der untersuchten Proben für den Wert von  $s$  eine Rolle spielen.

Bei den harten Supraleitern ist die Änderung der kritischen Temperatur mit dem Volumen verhältnismässig klein oder sogar negativ. Die Volumenabhängigkeit der totalen Elektron-Elektron-Wechselwirkung ist deshalb viel kleiner als man auf Grund von Gleichung (11 a) erwarten würde. Am besten erfüllt noch TaII, das sich in mancher Hinsicht wie ein weicher Supraleiter verhält, die Gleichung (11a).

Sind die supraleitenden Übergangsmetalle durch magnetische Atome verunreinigt, so ist ein Vergleich der Messresultate nicht mehr so einfach. Es tritt dann in der Elektron-Elektron-Wechselwirkung ein zusätzlicher Term, die Austauschwechselwirkung, auf, dessen Einfluss auf die Volumenabhängigkeit von  $T_c$  und  $NV$  ganz beträchtlich sein kann. Nach BALTENSBERGER<sup>52)</sup> gilt für die kritische Temperatur bei einer Konzentration  $n$  von magnetischen Fremdatomen

$$T_c(x) = T_c(0) (1 - 0,88 x) \quad x < 0,9. \quad (12)$$

Die Kopplungskonstante  $K$  ist von der Form  $\kappa = \alpha n N / k T_c(0)$ . Dabei bedeuten  $T_c(0)$  die kritische Temperatur des reinen ( $n = 0$ ) und  $T_c(K)$  diejenige des verunreinigten Metalls.  $\alpha$  enthält Grössen wie Ionenspin, Austauschintegral usw. und ist nur sehr schwach volumenabhängig. Damit erhält man durch Differentiation von Gleichung (12)

$$\frac{T_c(x)}{T_c(0)} = \frac{s(0) - g}{s(x) - g} \quad (13)$$

$s(0)$  und  $s(x)$  bedeuten die logarithmischen Ableitungen von  $T_c(0)$  und  $T_c(x)$  nach dem Volumen. Weiter wurde angenommen, dass  $g$  für das reine und verunreinigte Metall den gleichen Wert besitzt.

Wendet man Gleichung (13) auf die Resultate von Lanthan II an, so erhält man  $s(0) = -1,4$  (gestrichelte Linien in Fig. 18). Damit ergibt sich für die Volumenabhängigkeit der totalen Elektron-Elektron-Wechselwirkung  $\partial \log NV / \partial \log v = 0,6$ . Dieser Wert ist bedeutend kleiner als der von Gleichung (11a) geforderte.

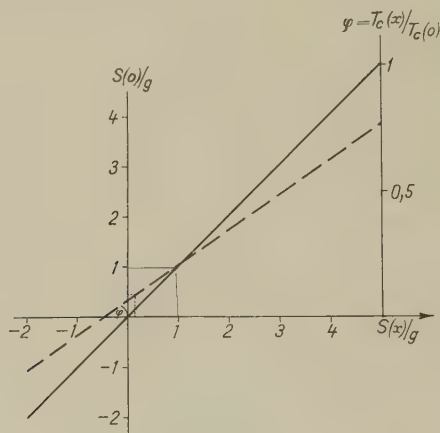


Fig. 18

*Anisotropieeffekte.* Für Indium und Quecksilber erhält man aus dem Experiment nur eine kleine Anisotropie von  $\partial \log NV / \partial \log v$  — bei Indium ist die eine beträchtliche Anisotropie aufweisende Grüneisenkonstante bedeutend kleiner als der fast isotrope Wert von  $s$ , bei Quecksilber ist sowohl  $s$  als auch die Grüneisenkonstante nahezu isotrop. Bei Zinn dagegen wird eine merkliche Anisotropie von  $\partial \log NV / \partial \log v$  auftreten. Sie ist von der gleichen Grössenordnung wie diejenige von  $s$  und  $g$ .

## VI. Einfluss der Änderung des Atomabstandes auf die Zustandsdichte

Verkleinert man in einem Metall den Atomabstand, so werden die Bänder der Elektronen im allgemeinen breiter. Als Folge davon verringert sich die Zustandsdichte an der Fermigrenze pro Energie und Mol. Man erwartet deshalb für  $g$  ( $= \partial \log N / \partial \log v$ ) einen positiven Wert. Nach Tabelle VI trifft dies für die weichen Supraleiter mit Ausnahme von Cadmium zu. Bei Quecksilber, Cadmium und Aluminium ist  $g$  aber ungewöhnlich



lich gross. Im folgenden soll versucht werden, eine Erklärung für die experimentell bestimmten Werte von  $g$  zu finden. Die Übergangsmetalle werden am Schluss dieses Abschnittes gesondert behandelt.

*Freies Elektronengas:* Nach dem Sommerfeld-Modell des freien Elektronengases erhält man  $g = 2/3$ . Dieses Modell liefert allgemein Werte für die Zustandsdichte an der Fermifläche, die auch im Falle mehrwertiger Metalle in guter Übereinstimmung mit dem Experiment sind. Trotzdem ist natürlich nicht zu erwarten, dass es die Volumenabhängigkeit der Zustandsdichte erklärt. So zeigt sich nach Tabelle VI nur bei Indium eine qualitative Übereinstimmung mit dem Modell des freien Elektronengases, bei den übrigen Supraleitern treten aber grosse Unterschiede auf. Es wird deshalb versucht, mit Hilfe eines Mehrbänder-Modells eine bessere Übereinstimmung mit dem Experiment zu finden.

*Das «Modell der starren Bänder».* Nach dem Modell der starren Bänder («Rigid Band Model») verursacht eine Änderung des Atomabstandes einzig eine Verschiebung der Bandrand- und Fermienergien mit einer gleichzeitigen Dehnung der Brillouinzonen (Fig. 19). Der Beitrag einer

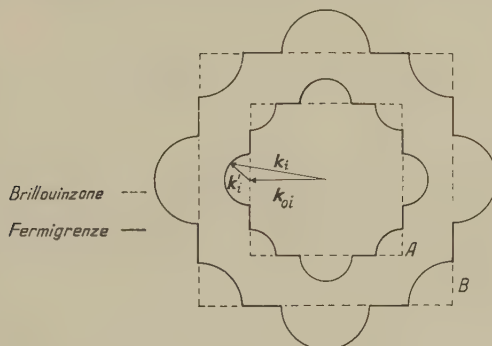


Fig. 19

Modell der starren Bänder

A ursprüngliche Brillouinzone

B Brillouinzone bei Kompression des Kristallgitters

Elektronen- oder Löchertasche («Pocket») zur Zustandsdichte an der Fermigrenze sei  $N_i$ . Dann ist  $N_i V_M \sim V_M |\mathbf{k}_i - \mathbf{k}_{oi}| = V_M |\mathbf{k}'_i|$ , ( $V_M$  = Molvolumen). Die Änderung von  $N_i$  ist somit gegeben durch

$$\frac{\Delta N_i}{N_i} = \frac{\Delta V_M}{V_M} + \frac{|\Delta \mathbf{k}'_i|}{|\mathbf{k}'_i|} = \frac{\Delta v}{v} + \frac{|\Delta \mathbf{k}_{oi}|}{|\mathbf{k}_{oi}|} = 2/3 \frac{\Delta v}{v}. \quad (14)$$

Für  $|\mathbf{k}_{oi}|$  als Vektor der Zonengrenze gilt  $|\mathbf{k}_{oi}| \sim l^{-1} \sim v^{-1/3}$ . Durch Summation über alle Taschen erhält man für  $g$  den Wert  $2/3$ . Das Modell der starren Bänder ergibt also genau den gleichen Wert für  $g$  wie das Sommerfeld-Modell des freien Elektronengases. Um zu grossen Werten

von  $g$  zu gelangen, muss man schon annehmen, dass ein bedeutender Teil von  $N$  mit einer sehr hohen Potenz von  $k$  abhängt. Da aber bei den mehrwertigen Metallen die Energie für den grössten Teil der Fermifläche quadratische  $k$ -Abhängigkeit zeigt (Kugeln, Ellipsoide, Zylinder), ist eine solche Annahme kaum gerechtfertigt.

*Unabhängige Verschiebung der Bandränder.* Durch die Änderung des Atomabstandes wird  $E(k)$  in viel komplizierterer Weise als nach dem Modell der starren Bänder beeinflusst. Insbesondere können sich die einzelnen Bandränder verschieben oder deformieren, ohne dass die Fermienergie sich wesentlich ändert. Fig. 20 zeigt ein entsprechendes Zweibandmodell. Die tiefste Energie des Bandrandes  $E_B$  liegt hier knapp unterhalb der Fermienergie. Dann dient das erste Band bei einer kleinen

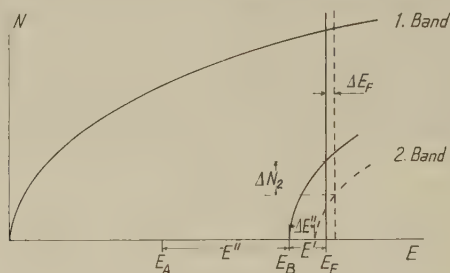


Fig. 20

Verschiebung von  $E_B$  als Elektronen- oder Löcherreservoir, so dass  $\Delta E' \gg \Delta E_F$  gilt. Die Zustandsdichte des zweiten Bandes an der Fermienergie sei  $N_2$ , die totale Zustandsdichte  $N$ . Die Änderung von  $N$  mit  $E'$  ist dann gegeben durch

$$\Delta N \sim \Delta N_2 \sim 1/2 \frac{\Delta E'}{\sqrt{E'}}. \quad (15)$$

Setzen wir die relative Änderung von  $E'$  mit dem mittleren Atomabstand  $(r/E')(\partial E'/\partial r) = \alpha$ , so gilt

$$g = \frac{\partial \log N}{\partial \log v} = \frac{3}{2} \alpha \frac{E'}{\sqrt{E'} \sqrt{E_F}}. \quad (16)$$

Dabei wurde  $N$  durch  $\sqrt{E_F}$  ersetzt. Es bleibt nun der Koeffizient  $\alpha$  in Gleichung (16) zu untersuchen. Er gibt im wesentlichen die Verschiebung der Bandrandenergie bei einer Änderung des Atomabstandes an. Um diese abzuschätzen, soll die Methode von WIGNER und SEITZ zur Erklärung der Kohäsion der Metalle hinzugezogen werden<sup>48)</sup>.

Der Zustand mit der Energie  $E_B(k)$  im Metall habe im freien Atom die Energie  $E_A$ . Die Energiedifferenz  $E_A - E_B$  kommt dadurch zustande, dass die Elektron-Wellenfunktion  $\psi$  des Atoms deren Form im periodischen Potential angepasst wird. Muss nur die Ableitung von  $\psi$  am Rande der

Wigner-Seitz-Zelle angepasst werden (zum Beispiel am untern Bandrand ( $\mathbf{k} = 0$ ) und für gewisse Symmetriepunkte der Brillouinzone) so erhält man

$$E'' = E_A - E_B \sim \int_z \psi (\partial\psi/\partial r) df \quad (17)$$

wobei über die Oberfläche der Wigner-Seitz-Zelle zu integrieren ist. Muss sowohl  $\psi$  als auch  $\partial\psi/\partial r$  am Rande der Wigner-Seitz-Zelle angepasst werden, so ist die Berechnung von  $E''$  bedeutend komplizierter. Zur Berechnung von  $E''$  nehmen wir an, dass  $\psi$  in einen  $r$ -abhängigen Teil separierbar sei, und dass die Wigner-Seitz-Zelle in erster Näherung kugelförmig ist. Man erhält dann

$$\beta = \left( \frac{\partial \log E''}{\partial \log r} \right)_{r=R} = 2 + \left( \frac{\partial \log \psi}{\partial \log r} \right)_{r=R} + \left( \frac{\partial \log \left( \frac{\partial \psi}{\partial r} \right)}{\partial \log r} \right)_{r=R}. \quad (18)$$

Dabei ist  $R$  der Zellenradius. Das erste Glied auf der rechten Seite von Gleichung (18) rührt von der Änderung der Zellenoberfläche her. Da  $E'' = \pm E'$ , modifiziert sich Gleichung (16) zu

$$g = \pm \frac{3}{2} \beta \frac{E''}{\sqrt{E'E_F}} = \frac{3}{2} \beta \cdot f. \quad (19)$$

Das Vorzeichen in Gleichung (19) hängt von der gegenseitigen Lage von  $E_F$ ,  $E_A$  und  $E_B$  ab.

Um die Berechnung von  $\beta$  zu vereinfachen, wurden Wasserstoffeigenfunktionen gewählt. Tabelle VIII gibt  $\beta$  für einige Wasserstoffeigenfunktionen mit verschiedenem Symmetriecharakter für einen Zellenradius von 2 Å. Der Wert von  $\beta$  hängt natürlich stark von der gewählten Wellen-

Tabelle VIII

$(r/E) (\partial E/\partial r)$  für die Wasserstoffeigenfunktionen  $\psi = R_{nl}(r) Y_{lm}(\varphi, \theta)$   $r = 2$  Å

$l =$	0	1	2	3	4
$n = 3$	16	-1,2	0,8		
$n = 4$	1,2	-0,6	1,7	4,6	
$n = 5$	-11,2	-1,0	-1,3	4,5	3,9

funktion und der Zellengrösse ab. Die Bindungsenergie  $E''$  im Faktor  $f$  kann von der gleichen Größenordnung wie  $E_F$  sein. Da  $E' \ll E_F$  angenommen wurden, ist unter Umständen  $f \gg 1$ .

Diese Abschätzung der Verschiebung des Bandrandes durch eine Änderung des Atomabstandes beruht nun allerdings auf verschiedenen Annahmen, die in Wirklichkeit nicht zutreffen:

1. Für  $\mathbf{k} \neq 0$  ist es unmöglich, die Wellenfunktion nur durch Anpassen der Ableitung am Rande der Wigner-Seitz-Zelle auf die durch die Gitterperiodizität geforderte Form zu bringen. Die Berechnung der Energie-

differenz Atom-Metall eines Zustandes und besonders deren Abhängigkeit von der Zellengrösse ist dann äusserst kompliziert.

2. Um für einen bestimmten  $\mathbf{k}$ -Vektor durch die Anpassung ein Energieminimum zu erhalten, ist meistens eine Überlagerung von Wellenfunktionen mit verschiedenem Symmetriecharakter nötig.

3. Die Randbedingungen für die Anpassung der Wellenfunktion hängen stark von  $\mathbf{k}$  ab.

4. Bei mehrwertigen Metallen werden immer mehrere Bandränder in der Nähe der Fermigrenze liegen. Die Änderung der Zustandsdichte wird nicht mehr in so einfacher Weise wie in Gleichung (15) von den Energieverschiebungen an den Bandrändern abhängen.

5. Selbstverständlich sollten die richtigen Wellenfunktionen des betreffenden Atoms angepasst werden und nicht die Wasserstoffeigenfunktionen.

Die Zustandsdichte wird also bedeutend komplizierter durch eine Änderung des Atomabstandes beeinflusst. Unter der Annahme, dass sich die Fermienergie nicht wesentlich verschiebt, erhält man an Stelle von Gleichung (19):

$$g = \frac{3}{2} \sum_i \int f_i(\mathbf{k}) \beta_i(\mathbf{k}) dS \quad (20)$$

$f_i(\mathbf{k})$  und  $\beta_i(\mathbf{k})$  entsprechen den Grössen  $f$  und  $\beta$  in Gleichung (19) für den Zustand  $\mathbf{k}$  des  $i$ -ten Bandrandes. In obiger Gleichung wird über den Bandrand integriert und über alle Bandränder, die in der Nähe der Fermigrenze liegen, summiert. Das Vorzeichen, das die gegenseitige Lage von  $E_A$ ,  $E_B(\mathbf{k})$  und  $E_F$  berücksichtigt, ist jetzt in  $f_i(\mathbf{k})$  enthalten.

*Vergleich mit den experimentellen Resultaten.* Nach dem vorhergehenden Abschnitt sind für eine starke Änderung der Zustandsdichte mit dem Volumen grosse  $f_i(\mathbf{k})$  (kleine Taschen der Fermifläche) oder grosse  $\beta_i(\mathbf{k})$  (starke Volumenabhängigkeit von  $E(\mathbf{k})$ ) besonders günstig. Die Werte von  $\beta$  in Tabelle VIII lassen vermuten, dass für grosse Werte von  $g$  hauptsächlich  $f_i(\mathbf{k})$  verantwortlich ist.

Nach Arbeiten von HEINE<sup>49)</sup> und HARRISON<sup>50)</sup> sollte die Fermifläche von Aluminium ganz kleine Taschen besitzen. HEINE erhält Löcher in der ersten, HARRISON Elektronen in der dritten Zone. Mit diesen Elektronentaschen der Fermifläche liesse sich die sehr grosse Volumenabhängigkeit der Zustandsdichte von Aluminium erklären. Messungen des Hall-effektes in hohen Magnetfeldern von LÜTHI<sup>51)</sup> zeigen, dass das Modell von HARRISON das wahrscheinlichere ist. Es wäre deshalb interessant zu sehen, ob der Wert von  $g$  bei Zulegierung eines niederwertigeren Metalls (Wegbringen der Elektronentaschen) stark geändert werden könnte.

Das wie Aluminium dreiwertige Indium ist zwar tetragonal, weicht aber nur wenig von der kubischen Struktur ab. Es besitzt im Gegensatz

zu Aluminium einen sehr kleinen Wert von  $g$ . Eine Erklärung wäre, dass entweder die kleine Verzerrung des kubischen Gitters oder die von Aluminium verschiedene Ionengrösse genügt, bei Indium die kleinen Taschen der Fermifläche wegzubringen.

Die beiden ziemlich grossen Werte von  $g$  von Quecksilber und Cadmium weisen auch bei diesen beiden zweiwertigen Supraleitern auf die Existenz kleiner Taschen der Fermifläche hin. Blei, Zinn und Thallium zeigen bezüglich der Änderung der Zustandsdichte mit dem Volumen keine Besonderheiten.

*Anisotropie.* Bei Indium und Quecksilber zeigt die Volumenabhängigkeit der Zustandsdichte an der Fermigrenze praktisch keine, bei Zinn jedoch eine beträchtliche Anisotropie. Für Indium und Zinn ist dieses Verhalten beim Betrachten der Kristallstruktur leicht einzusehen. Die kleine Abweichung von der kubischen Struktur verzerrt die Fermifläche bei Indium nur unmerklich, während sie durch die starke Abplattung der Einheitszelle bei Zinn bedeutend mehr deformiert wird, so dass auch die Volumenabhängigkeit der Zustandsdichte eine grössere Anisotropie besitzen sollte. Das Verhalten von Quecksilber ist aber nicht mehr so leicht verständlich. Wegen der Asymmetrie der Brillouinzonen und der grossen Anisotropie der elastischen Konstanten, kommen bei Dehnungen des Kristallgitters parallel und senkrecht zur Symmetrieachse für Gleichung (20) verschiedene  $f_i(\mathbf{k})$  und  $\beta_i(\mathbf{k})$  in Betracht. Man erwartet deshalb auch für  $g$  eine beträchtliche Anisotropie. Das ist aber, wie das Experiment zeigt, nicht der Fall.

Eine ähnliche Anisotropie wie die Volumenabhängigkeit der Zustandsdichte zeigt bei diesen drei Metallen auch der elektrische Widerstand, diejenige der elastischen Konstanten und des thermischen Ausdehnungskoeffizienten ist aber gänzlich verschieden davon (Tab. IX).

Tabelle IX  
Vergleiche verschiedener Anisotropieeffekte

Struktur	In tetrag.	Sn tetrag.	Hg rhomboed.
Abplattung . . . . .	1,09	0,55	
Elastizitätskonstanten . . . . .	a	a	A
$\sigma_{11}/\sigma_{33}$ . . . . .	0,80	1,55	3,4
Thermische Ausdehnung . . . . .	A	a	a
$\alpha_{\perp}/\alpha_{\parallel}$ . . . . .	<0	0,51	0,76
El. Widerstand . . . . .	i	a	a
$\sigma_{\perp}/\sigma_{\parallel}$ . . . . .	1,05	0,69	1,32
$g$ . . . . .	i	a	i
$g_{\perp}/g_{\parallel}$ . . . . .	1	0,43	1,14
i = fast isotrop    a = anisotrop    A = stark anisotrop.			



*Harte Supraleiter.* Es wurde an anderer Stelle<sup>28)</sup> die Vermutung ausgesprochen, dass bei den Übergangsmetallen keine so einfache Beziehung zwischen  $\gamma$  und  $N$  besteht wie bei den Metallen mit voller  $d$ -Schale. Es ist deshalb etwas fraglich, die Resultate der Volumenabhängigkeit von  $\gamma$  in gleicher Weise wie in Gleichung (4c) auch auf  $N$  zu übertragen.

### Schlussbemerkungen

In den letzten beiden Kapiteln wurde versucht, die Resultate der Experimente wenigstens qualitativ zu deuten. Die Ergebnisse seien hier kurz zusammengefasst.

1. Die Volumenabhängigkeit der totalen Elektron-Elektron-Wechselwirkung ist bei den meisten untersuchten Supraleitern gleich gross, und zwar gilt  $\partial \log NV / \partial \log v \approx 2$ .

2. Die Anisotropie der Volumenabhängigkeit von  $NV$  ist bei Indium, Zinn und Quecksilber ungefähr gleich derjenigen von  $T_c$ .

3. Die Änderung der Zustandsdichte an der Fermigrenze mit dem Volumen wird hauptsächlich durch eine von der Änderung der Fermienergie unabhängige Verschiebung der Bandränder hervorgerufen.

4. Die Anisotropie der Volumenabhängigkeit der Zustandsdichte kann bei Indium und Zinn aus deren Kristallstruktur verstanden werden. Es war jedoch nicht möglich, eine Erklärung für die kleine Anisotropie bei Quecksilber zu finden.

Herrn Prof. Dr. P. GRASSMANN, dem Vorsteher des Instituts, möchte ich für seine freundliche Unterstützung herzlich danken. Zu tiefem Dank bin ich P. D. Dr. J. L. OISEN für wertvolle Ratschläge beim Experiment und viele anregende Diskussionen verpflichtet. Weiter sei Herrn Dr. B. LÜTHI für sein Interesse an dieser Arbeit sowie den Herren Dres. J. MÜLLER und J. BLONIK für die Überlassung verschiedener hochreiner Vanadium- beziehungsweise Tantalproben gedankt. Diese Arbeit wurde finanziell durch Kredite aus dem «Aluminiumfonds Neuhausen» und dem «Arbeitsbeschäftigungskredit des Bundes» unterstützt.

### Literaturverzeichnis

- <sup>1)</sup> G. J. SZOOS und H. K. ONNES, Leiden Comm. 180b (1925).
- <sup>2)</sup> I. KAN und B. G. LASAREV, J. Exp. Th. Phys. 14, 439 (1944).
- <sup>3)</sup> N. E. ALEKSEEVSKII, J. Exp. Th. Phys. 19, 358 (1949).
- <sup>4)</sup> P. F. CHESTER und G. O. JONES, Phil. Mag. 44, 1281 (1953).
- <sup>5)</sup> M. D. FISKE, Phys. Rev. 96, 821 (1954).
- <sup>6)</sup> N. MÜNCH, Phys. Rev. 99, 1814 (1955).
- <sup>7)</sup> J. HATTON, Phys. Rev. 100, 1784 (1955).
- <sup>8)</sup> C. GRENIER, R. SPONDLIN und C. F. SQUIRE, Physica 19, 833 (1953).
- <sup>9)</sup> C. GRENIER, Comptes rendus 240, 2302 (1955).

- <sup>10</sup>) L. D. JENNINGS und C. A. SWENSON, Phys. Rev. *112*, 31 (1958).
- <sup>11</sup>) J. L. OLSEN, Nature *175*, 37 (1955).
- <sup>12</sup>) D. SHOENBERG, Superconductivity (Cambridge, 1952), p. 74.
- <sup>13</sup>) G. D. CODY, Phys. Rev. *111*, 1078 (1958).
- <sup>14</sup>) J. M. LOCK, A. B. PIPPARD und D. SHOENBERG, Proc. Camb. Phil. Soc. *47*, 811 (1951).
- <sup>15</sup>) D. R. WINDER und C. S. SMITH, J. Phys. Chem. Solids *4*, 128 (1958).
- <sup>16</sup>) P. W. BRIDGMANN, Proc. Am. Art. Sc. *81*, 165 (1925).
- <sup>17</sup>) E. GRÜNEISEN und O. SKELL, Ann. Physik *19*, 387 (1934).
- <sup>18</sup>) B. G. LASAREV und A. I. SUDOVSTOV, Dokl. Akad. Nauk. S.S.S.R. *69*, 345 (1949).
- <sup>19</sup>) P. N. DHEER und S. L. SURANGE, Phil. Mag. *3*, 665 (1958).
- <sup>20</sup>) J. C. McLENNAN, J. F. ALLEN und J. O. WILHELM, Trans. Roy. Soc. Can. *25* III, 1 (1931).
- <sup>21</sup>) R. V. JONES, J. Sci. Inst. *28*, 38 (1951).
- <sup>22</sup>) D. K. C. MACDONALD, J. Sci. Inst. *24*, 232 (1947).
- <sup>23</sup>) J. BUDNIK, Low Temp. Phys. Conf. Leiden (1958).
- <sup>24</sup>) G. BUSCH und J. MÜLLER, Helv. Phys. Acta *30*, 230 (1957).
- <sup>25</sup>) G. S. ANDERSON, S. LEGVOLD und F. H. SPEDDING, Phys. Rev. *109*, 243 (1958).
- <sup>26</sup>) A. BERMAN, M. W. ZEMANSKY und H. A. BOORSE, Phys. Rev. *109*, 71 (1958).
- <sup>27</sup>) B. T. MATTHIAS, H. SUHL und E. CORENZWIT, Phys. Rev. Letters *1*, 92 (1958).
- <sup>28</sup>) D. SHOENBERG, Low. Temp. Conf., Cambridge (1946).
- <sup>29</sup>) D. L. DECKER, D. E. MAPOTHER und R. W. SHAW, Phys. Rev. *112*, 1888 (1958).
- <sup>30</sup>) J. F. COCHRAN und D. E. MAPOTHER, Phys. Rev. *111*, 132 (1958).
- <sup>31</sup>) N. E. ALEKSEEVSKII und I. P. GAIDUKOV, J. Exp. Th. Phys. *2*, 762 (1956).
- <sup>32</sup>) J. E. SCHIRBER und C. A. SWENSON, Phys. Rev. Letters *2*, 296 (1959).
- <sup>33</sup>) J. L. OLSEN und H. ROHRER, Helv. Phys. Acta *30*, 49 (1957).
- <sup>34</sup>) J. L. OLSEN, Gryogenics(im Druck).
- <sup>35</sup>) B. LÜTHI und H. ROHRER, Helv. Phys. Acta *31*, 294 (1958).
- <sup>36</sup>) P. GRASSMANN, J. L. OLSEN und H. ROHRER, Z. Naturf. *11a*, 609 (1956).
- <sup>37</sup>) H. ROHRER, Helv. Phys. Acta *29*, 215 (1956).
- <sup>38</sup>) H. ROHRER, Helv. Phys. Acta *29*, 426 (1956).
- <sup>39</sup>) J. MÜLLER und H. ROHRER, Helv. Phys. Acta *31*, 289 (1958).
- <sup>40</sup>) H. ROHRER, Helv. Phys. Acta *32*, 312 (1959).
- <sup>41</sup>) H. ROHRER, Phil. Mag. *4*, 1207 (1959).
- <sup>42</sup>) L. S. KAN, A. L. SUDOVSTOV und B. G. LASAREV, J. Exp. Th. Phys. *18*, 825 (1948).
- <sup>43</sup>) M. D. FISKE, J. Phys. Chem. Solids *2*, 191 (1957).
- <sup>44</sup>) B. T. MATTHIAS, Progress in Low Temp. Phys. *II*, 138 (1955).
- <sup>45</sup>) J. BARDEEN, L. N. COOPER und J. R. SCHRIEFFER, Phys. Rev. *108*, 1175 (1957).
- <sup>46</sup>) D. PINES, Phys. Rev. *109*, 280 (1958).
- <sup>47</sup>) P. MOREL, J. Phys. Chem. Solids *10*, 277 (1959).
- <sup>48</sup>) E. P. WIGNER und F. SEITZ, Solid State Physics (Academic Press, New York, 1955), p. 97.
- <sup>49</sup>) V. HEINE, Proc. Roy. Soc. A *240*, 340 (1957).
- <sup>50</sup>) W. A. HARRISON, Phys. Rev. *118*, 1182 (1960).
- <sup>51</sup>) B. LÜTHI, Helv. Phys. Acta *32*, 470 (1959).
- <sup>52</sup>) W. BALTENSPERGER, Helv. Phys. Acta *32*, 197 (1959).
- <sup>53</sup>) J. MÜLLER, Helv. Phys. Acta *32*, 141 (1959).

# Der plötzliche, kurzzeitige Anstieg der kosmischen Strahlung vom 4. Mai 1960 nach der Registrierung der Nukleonenkomponente am Jungfrauoch

von **H. Debrunner, F. G. Houtermans** und **W. Lindt**  
Physikalisches Institut der Universität Bern

Am 4. Mai 1960 konnten wir mit der Neutronenzählapparatur B 203 nach SIMPSON<sup>1)</sup> am Jungfrauoch (Höhe 3550 m ü. M., geomagn. Breite 47° 56' N, geogr. Länge 7° 59' E) eine aussergewöhnliche und kurzfristige Erhöhung der Intensität der Nukleonenkomponente der kosmischen Strahlung festhalten. Die druckkorrigierten 15-min-Ablesungen der Apparatur sind in Tabelle 1 und Figur 1 durch die prozentuale Abweichung von der für die Zeit vom 1. 8. 1959 bis 1. 8. 1960 ungefähr gültigen mittleren Intensität  $I_0 = 3 \cdot 10^5$  cph wiedergegeben: Die Resultate zwischen

Tabelle 1

## 4. Mai 1960 Neutronenmonitor-Daten B 203

A: Prozentuale Abweichung der Neutronenintensität von dem für die Zeit vom 1. 8. 1959 bis 1. 8. 1960 ungefähr gültigen Mittelwert  $I_0 = 3 \cdot 10^5$  cph.  
B: Messintervall (GMT).

B	A	B	A
00.30–01.30	–1,23	11.45–12.00	+0,04
01.30–02.30	–0,95	12.00–12.15	+0,34
02.30–03.30	–1,31	12.15–12.30	+0,34
03.30–04.30	–1,36	12.30–12.45	–0,98
04.30–05.30	–1,47	12.45–13.00	–0,69
05.30–06.30	–1,06	13.00–13.15	–0,10
06.30–07.30	–0,77	13.15–13.30	–0,39
07.30–08.30	–1,78	13.30–14.30	–0,25
08.30–09.30	–1,34	14.30–15.30	–1,07
09.30–09.45	–0,57	15.30–16.30	–1,56
09.45–10.00	–1,89	16.30–17.30	–0,97
10.00–10.15	–1,66	17.30–18.30	–1,04
10.15–10.30	–1,66	18.30–19.30	–0,78
10.30–10.45	+7,62	19.30–20.30	–0,25
10.45–11.00	+7,77	20.30–21.30	–0,40
11.00–11.15	+2,55	21.30–22.30	–0,38
11.15–11.30	+2,26	22.30–23.30	–0,07
11.30–11.45	+0,63	23.30–24.30	–0,90

10.30 und 11.00 GMT zeigen gegenüber den Werten von 10.00 bis 10.30 einen Anstieg von  $9,3 \pm 0,6\%$ , wobei der mittlere statistische Fehler der einzelnen 15-min-Messung 0,4% beträgt. Der erste abrupt erhöhte 15-min-Wert erfasst also das Intervall von 10.30–10.45, und der Einsatz des Anstieges konnte aus der kontinuierlichen Registrierung mit einer Zeit-

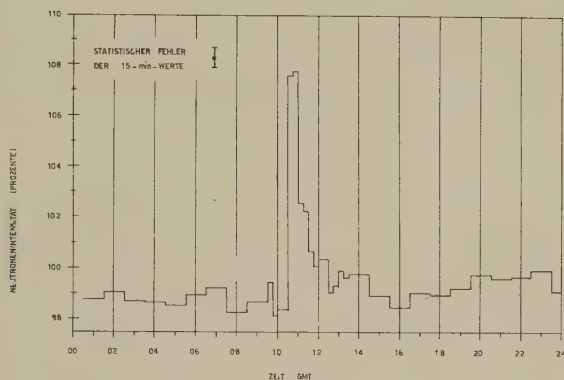


Fig. 1

4. Mai 1960; Neutronenmonitor-Daten B 203

konstanten von 400 sec auf  $10.32 \pm 2$  min bestimmt werden. Das Maximum wurde um  $10.50 \pm 2$  min erreicht. Die Fehlergrenze wurde durch die halbe Abweichung der Einsatzzpunkte des Anstieges (bzw. der Maximalpunkte) der beiden Apparaturen angenommen. Nach 11.00 sinkt die Intensität und erreicht nach 12.30 wieder das Niveau, das vor Einsatz der Erhöhung registriert wurde. Dieses Ereignis, das weltweit erfasst wurde<sup>2)3)</sup>, steht sicherlich mit der solaren Eruption in Zusammenhang, die von 10.20–10.25 in  $11^\circ$  N,  $90^\circ$  W festgehalten werden konnte<sup>4)</sup>, und stellt seit 23. Februar 1956 den ersten spontanen Anstieg der Nukleonenkomponente der kosmischen Strahlung dar, die auch in mittleren Breiten nachgewiesen werden konnte. Dabei ist festzuhalten, dass

1. der Ausbruch vom 4. Mai gegenüber den frühern solchen Ereignissen sehr kurzfristig war,
2. wir beim Einsatz des Anstieges gerade knapp ausserhalb des sogenannten «impact zones» lagen<sup>5)</sup> und
3. die kosmische Strahlungsintensität sich am 4. Mai vom Forbush-Abfall, der am 30. April einsetzte, allmählich wieder erholt hatte.

Schlüsse über das Spektrum der zusätzlichen Strahlung sowie über das zeitliche Abfallgesetz nach Erreichen des Maximums werden sich erst aus dem Vergleich der Daten aller Registrierapparaturen der kosmischen

Strahlung ziehen lassen. Die detaillierten Daten unserer Station wurden zum Zwecke einer umfassenden theoretischen Bearbeitung an die drei Sammelzentren der internationalen geophysikalischen Kooperation eingesandt.

Die Registrierung der kosmischen Strahlung am Jungfraujoch wird durch den Schweizerischen Nationalfonds und die Kommission für Atomwissenschaft finanziert, und die Apparatur ist in den Gebäuden der Hochalpinen Forschungsstation Jungfraujoch untergebracht. Allen diesen Institutionen sei für ihre Unterstützung unserer Arbeit bestens gedankt.

### Literatur

- 1) J. A. SIMPSON, Special Report: Cosmic Radiation, Neutron Intensity Monitor, University of Chicago 1955.
- 2) Solar flare effect of 4 May 1960 observed at Uppsala Spezialbericht der «Cosmic Ray Group, Institute of Physics, Uppsala, Sweden» 1960.
- 3) R. A. R. PALMEIRA, K. G. McCracken, Physical Review Letters 5, 15 (1960).
- 4) Daily Maps of the Sun, Fraunhofer Institut, Freiburg i. Br.
- 5) J. FIROR, Phys. Rev. 94, 1017 (1954).



## Wolfgang Pauli

1900 – 1958

Das vorliegende Heft der *Helvetica Physica Acta* ist dem Andenken von Wolfgang Pauli gewidmet. Es hat wohl selten einen Physiker gegeben, der wie er das gesamte riesige Gebiet der Physik mit all ihren Verzweigungen beherrschte und überblickte. Es gab kaum ein Teilgebiet dieser Wissenschaft, das er nicht mit intensivem Interesse verfolgte. Aus diesem Grunde war es nicht nötig, eine spezielle Auswahl der hier gesammelten Arbeiten nach inhaltlichen Gesichtspunkten vorzunehmen. In erster Linie sollten natürlich Physiker vertreten sein, die Pauli wissenschaftlich nahe standen, sei es als ehemalige Schüler oder als Kollegen, die mit ihm gearbeitet haben. Dann über sind überhaupt Physiker vertreten, die zur Zeit in der Schweiz tätig sind.

Nach Vollendung der nicht-relativistischen Quantenmechanik, die mit dem Pauliprinzip und Paulis nicht-relativistischen Theorie des Spins abschloss, galt sein Hauptinteresse und seine Liebe der Quantenelektrodynamik und Quantenfeldtheorie. Zu diesem zentralen, und bis heute ungelösten Problem der Physik kehrte er immer wieder, trotz seiner weitverzweigten sonstigen Interessen, zurück. Dementsprechend sind auch in diesem Heft eine grössere Anzahl von Arbeiten diesem Gebiet gewidmet. Paulis grösste Leistungen sind hier wohl die Formulierung der Quantenelektrodynamik selbst, zusammen mit Jordan und Heisenberg, (und gleichzeitig mit Dirac) und dann das Aufzeigen der Verknüpfung, die zwischen dem Spin eines Teilchens und dessen Statistik besteht. Diese beruht wesentlich auf der Kombination von Quantenmechanik und Relativitätstheorie. Die letzteren Arbeiten sind sehr charakteristisch für Paulis Geist, der mehr dazu neigte, allgemeine exakte Zusammenhänge aufzudecken, als spezielle physikalische Probleme zu behandeln. Daher auch sein intensives Interesse an der Gruppentheorie und ihren physikalischen Auswirkungen. Die späteren Arbeiten über Feldtheorie waren notwendigerweise mehr kritischen Charakters. Das Zentralproblem – die Konvergenz der Feldtheorie – blieb ja ungelöst, und Paulis Arbeiten waren mehr dazu angetan, die Tiefe und Schwierigkeit des Problems zu unter-

streichen, als vorläufige Lösungsversuche zu unternehmen, die sich vermutlich doch als unbrauchbar herausstellen würden (obwohl es auch solche Arbeiten von Pauli gibt, wie zum Beispiel die Arbeiten über starke Kopplung in der Mesontheorie, die Regularisierung, um nur die wichtigsten zu nennen).

Auf die wichtigen Arbeiten Paulis auf anderen Gebieten, insbesondere auch über das H-Theorem – dessen endgültige Aufklärung weitgehend durch ihn gefördert wurde –, sei hier nicht näher eingegangen. Ebenso wenig ist es möglich, den ungedruckten Teil von Paulis Werk voll zu würdigen: Seine unerhörte kritische Fähigkeit hat alle Gebiete der Physik auf indirekte Weise befruchtet. Zahlreiche Arbeiten anderer Autoren (zum Teil recht wichtige) verdanken ihre Existenz einem mündlichen Gespräch mit Pauli oder einer kritischen Diskussionsbemerkung auf einer Konferenz. Auch manche weniger wertvolle Arbeit blieb auf diese Art glücklicherweise ungedruckt.

Dagegen sei noch auf eine ganz andere Arbeitsrichtung Paulis hingewiesen. Sein Interesse war nicht auf Physik allein beschränkt. Erkenntnis ganz allgemein war seine Leidenschaft. Physik war der ihm naheliegende Teil von Naturerkenntnis, der Teil, der sich mit lebloser Materie beschäftigt. Aber wie verhält sich Physik zur Wissenschaft des Lebendigen? Mit intensivem Interesse verfolgte er die Fortschritte in Biologie und Psychologie. Pauli war kein Anhänger des wissenschaftlichen Materialismus, der glaubt, dass auch das Leben vollständig durch physikalische und chemische Gesetze erklärt werden könne. Seine Denkrichtung in dieser Frage war wohl stark durch Bohrs Spekulationen über die Grenze zwischen Physik und Biologie beeinflusst. Seine Neugier in dieser Hinsicht blieb aber im wesentlichen unbefriedigt, was bei dem gegenwärtigen Stand der biologischen Forschung und der vorherrschenden Tendenz kaum anders sein konnte. Dagegen führte sein Interesse an diesen Gebieten zu einer lebhaften und fruchtbaren Zusammenarbeit mit Jung. Leider war es unmöglich, auch diese Arbeitsrichtung Paulis in diesem Heft zum Ausdruck zu bringen. Die vorliegenden Arbeiten sind weniger als direkter Ausdruck von Paulis Werk gedacht, sie sollen vielmehr lediglich die Erinnerung an diesen grossen Geist wach erhalten.

W. Heitler



*W. Pauli*



# Systems of Observables in Quantum Mechanics

by J. M. Jauch

Office of Naval Research, London (England)

*Abstract.* The self adjoint linear operators which represent the observables of a physical system are in general not an irreducible system. Because a complete set of commuting observables must determine the state of a physical system unambiguously the observables generate an algebra of operators which must contain a maximal abelian subalgebra. The structure of such algebras is investigated and it is shown by applying the theory of the direct integral of Hilbert spaces that there exists always a unique canonical representation of the Hilbert space as a direct integral in such a way that the transformations which are induced by the observables in the component subspaces are irreducible.

## 1. Introduction

In this paper we shall analyze the mathematical structure of the sets of operators which represent observables in a quantum mechanical system. Until recently it has generally been assumed, either tacitly or overtly, that such operators form an irreducible system in the space of the state vectors. And indeed the simple systems usually encountered in ordinary atomic physics are of this kind. Yet as WICK, WIGHTMAN, and WIGNER have first pointed out, there are important physical systems for which this is not the case<sup>1</sup>). In such systems not every self-adjoint operator is an observable. In  $W^3$  the example given for such operators which are not observables are the field operators of a spinor field. Another example are the 1- and 2-components of the isotopic spin operators<sup>2</sup>). When this phenomenon occurs we speak of *superselection rules*.

Under these circumstances one may well ask the question what one can state in general about the structure of the sets of operators which represent the physical observables. In this general form the question does not seem to be well set since there are no known criteria by which one might characterize sets of operators as observables of a real physical system. However there is an important restriction on such systems which stems from the fact that there must exist a 'complete set of commuting observables'. Roughly speaking the existence of such a set means that the set of all observables cannot be too small, although it may not have to be an irreducible set. It will be shown in this paper that this condition leads to a complete structure theory of the systems of physical observables



with the very simple result that to every physical system belongs a unique decomposition of the Hilbert space in such a manner that the observables act irreducibly on the component spaces.

## 2. Complete Sets of Commuting Observables

The need for this concept arises from the problem of assigning state vectors to sets of measurements on a physical system. The state vectors are elements in a separable Hilbert space  $\mathfrak{H}$  and the observables are represented as linear operators on  $\mathfrak{H}$ .

The measurements which we are considering here are those which PAULI has called measurements of the first kind<sup>3</sup>). They are characterized by the property that a repetition of a measurement of the same kind immediately afterwards gives the same result as the preceding measurement with probability one. They alone are suitable for the determination of the state of a system.

For instance if  $A$  is the operator, representing such a measurement and the result of an experiment was an eigen value  $a$  of  $A$  then the state vector  $\psi$  after this measurement is an eigen-state of  $A$  with the eigen value  $a$ :

$$A\psi = a\psi \quad (2.1.)$$

If the eigen value  $a$  is non-degenerate, that is if, apart from normalization there belongs only one eigen vector to the eigen value  $a$ , then the measurement of  $A$  with the result  $a$  is just sufficient for the complete determination of the state. Any additional measurement on this system will either give no new information or it will destroy the information already obtained by the first measurement.

In general one cannot expect that a single measurement will determine the state. Thus if the eigen value  $a$  is degenerate then additional independent measurements are possible which do not interfere with each other. For example the momentum measurement of an electron does not determine the state of the electron no matter how accurately it has been performed. The reason is that there exist internal degrees of freedom, the spin, which doubles each momentum state of the electron and only a measurement of the spin together with the momentum is sufficient for the full determination of the state of the electron.

In order to have an unambiguous description of the states of a physical system in terms of state vectors it is thus necessary to postulate the existence of a complete set of compatible independent measurements which provide the maximum amount of possible information about the physical system. Such observables are represented by a set of self adjoint operators in a Hilbert space  $\mathfrak{H}$  and one is naturally led to the problem

of characterizing a set of self-adjoint operators which correspond to such a maximal set of observables.

In case we are dealing with operators in a finite dimensional space this is easy and can be given adequately in the words of DIRAC<sup>4</sup>) as 'a set of observables which all commute with one another and for which there is only one simultaneous eigenstate belonging to any set of eigenvalues.'

In the more important infinite dimensional case this definition is not suitable since operators may have continuous spectrum and then there exist no eigen functions. This means an equation such as (2.1) for a state vector  $\psi$  in  $\mathfrak{H}$  has no solution if  $a$  is in the continuous part of the spectrum of  $A$ . A simple example is the operator  $q$  associated with one of the Cartesian coordinates of a particle. Its effect on a Schrödinger function  $\psi(x)$  is defined as

$$(q\psi)(x) = x\psi(x) \quad (2.2)$$

and it is easy to verify that there exists no square integrable function  $\psi(x)$  which satisfies an equation

$$(q\psi)(x) = a\psi(x)$$

for any value of  $a$ .

It is therefore clear that a different definition is needed for such a complete set of observables if it should be applicable in the infinite dimensional case also.

To this end we shall first redefine the concept in the finite dimensional case in a new but equivalent way which can be generalized to the infinite dimensional case with the addition of only a few measure theoretic and topological technicalities.

The first step consists in replacing the set of observables  $A_1, A_2, \dots$  etc. by the algebra  $\mathfrak{A}$  of all polynomials  $p(A_1, A_2, \dots)$  with complex coefficients. This is a natural step also from the physical point of view. For we must remember that a measurement of the set of observables  $A_1, A_2, \dots$  etc. is also simultaneously a measurement of every polynomial  $p(A_1, A_2, \dots)$ . Indeed if the result of such a measurement is the set of values  $a_1, a_2, \dots$  respectively then the polynomial  $p(A_1, A_2, \dots)$  may be considered as measured too with the value  $p(a_1, a_2, \dots)$ . A determination of  $A_1, A_2, \dots$  is therefore at the same time a determination of every operator in the algebra  $\mathfrak{A}$ .

Next we detach ourselves from the particular basis  $A_1, A_2, \dots$  used for generating the algebra  $\mathfrak{A}$ . There are obviously many different choices of operators in  $\mathfrak{A}$  which generate the same algebra. It is therefore natural to replace the original base by another one which is characterized by the greatest simplicity. A little reflection shows that it is always possible to choose one single operator  $A \in \mathfrak{A}$  which alone generates the algebra in the sense that every element in  $\mathfrak{A}$  can be written as a polynomial  $p(A)$  of the

one operator  $A$ . If the algebra  $\mathfrak{A}$  is generated by a *complete* system of observables  $A_1, A_2, \dots$  then the single operator  $A$  which generates  $\mathfrak{A}$  must have a non-degenerated (or simple) spectrum. We have thus succeeded in replacing the property of the completeness of a set of operators by that of a single operator.

We can further simplify this by replacing the property of the operator  $A$  to have a simple spectrum by a property of the algebra  $\mathfrak{A}$  which it generates. To this end it is convenient to consider the commutator algebra  $\mathfrak{A}'$ , that is the set of all operators which commute with  $\mathfrak{A}$ . Because  $\mathfrak{A}$  is abelian we have obviously

$$\mathfrak{A} \subseteq \mathfrak{A}' \quad (2.3)$$

But because  $\mathfrak{A}$  is generated by an operator  $A$  with simple spectrum we also have

$$\mathfrak{A}' \subseteq \mathfrak{A} \quad (2.4)$$

and hence

$$\mathfrak{A} = \mathfrak{A}' \quad (2.5)$$

An algebra  $\mathfrak{A}$  which satisfies (2.5) is called maximal abelian.

The verification of (2.4) is based on the observation that any operator  $B$  which commutes with  $A$  is necessarily a function of  $A$  if  $A$  has simple spectrum. In the coordinate system which diagonalizes  $A$  the operator  $B$  is also diagonal because it commutes with  $A$ . Let  $a_r$  and  $b_r$  be the corresponding eigenvalues of  $A$  and  $B$ . Define the polynomial  $p(x)$  in such a way that  $p(a_r) = b_r$  then  $p(A) = B$ . Thus  $B$  is a function of  $A$  and hence  $\in \mathfrak{A}$ .

A final remark on the finite dimensional case will be of use later. We have generated the algebra  $\mathfrak{A}$  by considering all complex polynomials of the generating operators  $A_1, A_2, \dots$ . We could have proceeded differently by using the known fact that the set of such polynomials can also be obtained as the set of all operators  $A$  which commute with all operators  $T$  which in turn commute with  $A_1, A_2, \dots$ . This seems a roundabout way of getting at the algebra  $\mathfrak{A}$  but it turns out that in the infinite dimensional case this way of generating the algebra  $\mathfrak{A}$  is far simpler than by a generalization of the functions  $p(A_1, A_2, \dots)$ .

With these remarks we arrive at the following equivalent definition of a complete set of commuting observables valid in the finite dimensional case:

*Definition:* A set of commuting operators  $\mathfrak{S} = \{A_i\}, i \in I$  ( $I$  an index set) is said to be *complete* if the algebra  $\mathfrak{A} = \mathfrak{S}''$  generated by the set is maximal abelian:

$$\mathfrak{A}' = \mathfrak{A}.$$

Our next task is to show that this definition can be literally taken over to the infinite dimensional case. The main point is to show that the connection between operators with simple spectrum (properly generalized to the infinite dimensional case) and maximal abelian algebras remain valid for operators in Hilbert space. We shall devote the next three sections to this task.

### 3. Von Neumann Algebras of Bounded Operators

We shall now consider the transition from the finite to the infinite dimensional space. First we must take into account that the self-adjoint operators  $A$  are in general unbounded. An operator  $A$  is said to be bounded with bound  $M = \|A\| < \infty$  if  $M$  is the least upper bound of  $\|A\psi\|$  for all  $\psi \in \mathfrak{H}$  on the unit sphere:  $\|\psi\| = 1$ .

$$\|A\| = l.u.b. \|A\psi\| \quad (3.1)$$

$\|\psi\| = 1$

If  $M$  is infinite then the operator is said to be unbounded. Some of the most commonly used operators, such as the Cartesian coordinates, the momenta, or the total energy are unbounded operators.

The complication with the unbounded operators is that they can never be defined on the whole space  $\mathfrak{H}$  but only on a certain dense linear manifold of  $\mathfrak{H}$ . Since two dense linear manifolds have as an intersection again a linear manifold which need be neither dense, nor even  $\neq 0$  the unrestricted combination of such operators may lead to mathematical difficulties. It is therefore simpler to work with unbounded operators only.

Since we are working exclusively with self-adjoint or normal operators for which there always exists a unique spectral resolution we can always use the set of spectral projections to replace the operator. They are of course all bounded.

The spectral projections of  $A$  are a uniquely determined family of projections  $E_\lambda$  depending on a parameter  $\lambda$  ( $-\infty < \lambda < +\infty$ ) and having the following properties

- (i)  $E_\lambda^2 = E_\lambda, E_\lambda^* = E_\lambda$
- (ii)  $\lambda_1 < \lambda_2$  implies  $E(\lambda_1) < E(\lambda_2)$
- (iii)  $E_{\lambda+0} = E_\lambda$
- (iv)  $E_{-\infty} = 0, E_{+\infty} = I$
- (v)  $A = \int_{-\infty}^{+\infty} \lambda dE_\lambda$

The last equation is to be interpreted as the Stieltjes integral valid for any pair of elements  $f, g$

$$(f, Ag) = \int_{-\infty}^{+\infty} \lambda d(f, E_{\lambda} g)$$

Let now  $A$  be a self-adjoint operator. We say the bounded operator  $T$  commutes with  $A$  if it commutes with all spectral projections of  $A$ . The set  $\mathfrak{N}$  of all elements  $T$  which commute with a given self-adjoint operator  $A$  are a family of bounded operators which have the following properties

- (i) If  $T \in \mathfrak{N}$  then  $\alpha T \in \mathfrak{N}$  for any complex  $\alpha$
- (ii) If  $T_1 \in \mathfrak{N}$  and  $T_2 \in \mathfrak{N}$  then  $T_1 + T_2 \in \mathfrak{N}$  and  $T_1 T_2 \in \mathfrak{N}$
- (iii) If  $T \in \mathfrak{N}$  then  $T^* \in \mathfrak{N}$
- (iv)  $\mathfrak{N}$  is weakly closed

With weakly closed we mean the following: An operator  $A$  is weakly adherent to  $\mathfrak{N}$  if for any pair of elements  $f, g \in \mathfrak{H}$  and  $\varepsilon > 0$  there exists an element  $T \in \mathfrak{N}$  such that

$$|(f, Sg) - (f, Tg)| < \varepsilon$$

$\mathfrak{N}$  is weakly closed if every element  $T$  weakly adherent to  $\mathfrak{N}$  is also contained in  $\mathfrak{N}$ .

Only property (iv) is not immediately obvious. So we give a short proof of it here. What we must show is: if  $S$  is weakly adherent to  $\mathfrak{N}$  then  $AS = SA$ . We write for  $T \in \mathfrak{N}$

$$AS - SA = A(S - T) - (S - T)A$$

since  $T$  commutes with  $A$ . Taking the scalar product for any pair of elements  $f, g \in \mathfrak{H}$  we have

$$|(f, (AS - SA)g)| \leq |(f, A(S - T)g)| + |(f, (S - T)Ag)|$$

Since  $S$  is weakly adherent to  $\mathfrak{N}$  we can choose  $T$  such that each expression on the right is  $< \varepsilon/2$ . Since  $\varepsilon$  is arbitrary we have for any pair of elements  $f, g$

$$(f, (AS - SA)g) = 0$$

or

$$AS = SA \quad \text{q. e. d.}$$

The first three properties are unified in the statement that  $\mathfrak{N}$  is a \*-algebra.



A set of elements which satisfies the four properties listed above will be called a von Neumann algebra<sup>5)</sup>. An important property of a von Neumann algebra (which may also be used as a defining property) is that it is identical with its double commutant

$$\mathfrak{N}'' = \mathfrak{N} \quad (3.2)$$

We shall call the algebra  $\mathfrak{A} = \mathfrak{N}' = \{A\}''$  generated by the operator  $A$ . It is the smallest von Neumann algebra  $\mathfrak{A}$  containing  $A$ . Because  $A \in \{A\}' = \mathfrak{N}$  it follows that  $\mathfrak{N}' = \mathfrak{A} \subseteq \mathfrak{N}$  and therefore

$$\mathfrak{A} \subseteq \mathfrak{A}' \quad (3.3)$$

that is,  $\mathfrak{A}$  is abelian. If  $\mathfrak{A}'$  is also abelian and therefore  $\mathfrak{A} = \mathfrak{A}'$  we call it maximal abelian.

The generation of an abelian von Neumann algebra can be generalized to any set of commuting self-adjoint operators. Let  $\mathfrak{S} = \{A_i\}$  be such set where  $i$  is from some (not necessarily countable) index set  $I$ . We define by

$$\mathfrak{A} = \mathfrak{S}'' \quad (3.4)$$

the abelian von Neumann algebra generated by the set  $\mathfrak{S}$ .

In the previous section we mentioned the easily verified fact that in a finite dimensional space any abelian algebra of linear operators generated by a set of commuting self-adjoint operators can also be generated by a single self-adjoint operator.

According to VON NEUMANN<sup>6)</sup> this theorem is still valid in the infinite dimensional case. *Every abelian von Neumann algebra can be generated with a single self adjoint operator.* Because of this theorem we can limit the discussion to the case of von Neumann algebras generated by one single self-adjoint operator. This is a great simplification and this we shall henceforth do.

The elements in the algebra  $\mathfrak{A} = \{A\}''$  generated by the bounded self-adjoint operator can also be characterized in a different way. If  $u(\lambda)$  is a complex valued function with the property that it is measurable with respect to the density function  $(f, E_\lambda g)$  for any pair of elements  $f$  and  $g$  and essentially bounded then the operator  $u(A)$  defined by

$$u(A) = \int_{-\infty}^{+\infty} u(\lambda) dE_\lambda$$

is a bounded operator contained in  $\mathfrak{A}$ . The converse of this is also true: Any operator  $T \in \mathfrak{A}$  is of the form  $u(A)$  for some function  $u(\lambda)$ <sup>7)</sup>.

#### 4. Operators with Simple Spectrum

The main question which we shall be concerned with next is how the property of the generating element  $A$  to have a simple spectrum is mirrored in the properties of the algebra  $\mathfrak{A} = \{A\}''$  which it generates.

In the finite dimensional case we have seen that the corresponding property of  $\mathfrak{A}$  is that it is maximal abelian. There is a similar connection in the infinite case, but so far we are not able to formulate this connection properly because we have not yet stated what we mean with ' $A$  has a simple spectrum'.

In the finite case the spectrum of  $A$  is called simple if every eigenvalue of  $A$  is non degenerate, that is if the equation

$$A\psi = a\psi \quad (4.1)$$

has exactly one solution (apart from an arbitrary factor) for each eigenvalue  $a$  of  $A$ . In the infinite-dimensional case this definition of a simple spectrum is unusable because if  $a$  lies in the continuous spectrum then (4.1) has no solution. Thus we must proceed differently. We must find a definition of the simple spectrum which coincides in the finite case with the one just given but which makes no reference to eigenvalues and eigenfunctions. This can be done with the notion of the generating element.

Let  $A$  be an operator in the  $n$ -dimensional space  $\mathfrak{H}$  ( $n < \infty$ ) and consider a polynomial  $p(x)$  of the independent variable  $x$ . To every such polynomial we can associate an operator called  $p(A)$  by substituting in the expression for  $p(x)$  the operator  $A$  at the place of  $x$ . Let us now consider an element  $g \in \mathfrak{H}$  then the set of elements  $p(A)g$  obtained by letting  $p(x)$  run through all the polynomials is a linear subspace  $\mathfrak{G}$  of  $\mathfrak{H}$ . (Note that only polynomials of degree  $< n$  will occur in  $p(A)$  since  $A$  satisfies an algebraic equation of degree  $n$ ). If this subspace  $\mathfrak{G} = \mathfrak{H}$  we call  $g$  a generating element for  $A$ .

We verify that such a generating element exists if and only if the spectrum of  $A$  is simple. Indeed let  $A$  have simple spectrum and let  $\varphi_r$  be the eigen vector of  $A$  to the eigenvalue  $a_r$ . Then

$$g = \sum_{r=1}^n \varphi_r$$

is a generating element. In order to obtain the element

$$f = \sum_{r=1}^n x_r \varphi_r$$

with arbitrary coefficients  $x_r$  in the form  $f = p(A)g$  we construct a polynomial  $p(x)$  with the property  $p(a_r) = x_r$  ( $r = 1, \dots, n$ ). This can be done with a polynomial of degree  $< n$ . It follows that

$$\phi(A)g = \sum_{r=1}^n \phi(A) \varphi_r = \sum_{r=1}^n x_r \varphi_r = f$$

In order to see conversely that a generating element implies a simple spectrum, we assume that the eigenvalue  $a = a_1$  is degenerate. Let  $M$  be the subspace spanned by the proper elements associated with  $a$ . Let  $g$  be the assumed generating element and  $g_1$  its component in  $M$ . Since  $M$  reduces  $A$ , any transformation  $\phi(A)$  transforms  $g_1$  according to

$$\phi(A) g_1 = \phi(a) g_1$$

Let  $f_1 \in M$ , and  $(f_1, g_1) = 0$ ,  $f_1 \neq 0$ . Such an element exists because  $a_1$  is degenerate. For every  $\phi(A)$  we have then

$$(f_1, \phi(A)g) = (f_1, \phi(a)g_1) = \phi(a) (f_1, g_1) = 0$$

Hence  $f_1$  is orthogonal to all elements of the form  $\phi(A)g$ . Thus  $f_1 = \phi(A)g$  is impossible and  $g$  is not a generating element. This contradicts the assumption that it is.

Thus the following definition is an equivalent characterization of an operator with simple spectrums.

*Definition:* The self-adjoint operator in the finite dimensional space  $\mathfrak{H}$  is said to have a simple spectrum if there exists a generating element  $g$  such that every element  $f$  in  $\mathfrak{H}$  can be represented in the form  $f = \phi(A)g$  with some polynomial  $\phi(A)$ .

The transcription of this definition to the infinite case is now fairly obvious. Instead of the algebra generated by polynomials of  $A$  we substitute the von Neumann algebra generated by  $A$ . We denote by  $\{\mathfrak{A}g\}$  the set of all elements  $Tg$  with  $T \in \mathfrak{A}$ . This set is obviously a linear manifold but in general we cannot assert that it is closed in the topology induced by the norm. The best we can expect is that it is dense in  $\mathfrak{H}$ . Thus we define

*A self-adjoint operator  $A$  is said to have a simple spectrum if the linear manifold  $\{\mathfrak{A}g\}$  is dense in  $\mathfrak{H}$ .*

## 5. Algebras Generated by Operators with Simple Spectrum

We are now prepared for answering the question posed at the beginning of the last section. It is contained in the following

*Theorem:* The necessary and sufficient condition that the abelian von Neumann algebra  $\mathfrak{A}$  is maximal abelian is that it is generated by a self-adjoint operator  $A$  with simple spectrum.

Although this theorem occurs in various contexts in the literature we shall give here a short proof so that the reader may be spared the labour of searching in the literature for it. Moreover the proof employs some of the typical reasonings involved for some proofs needed in the remaining part of the paper which will not be given.

*Proof:* Let  $\mathfrak{A} = \{A\}''$  and let  $A$  have simple spectrum. We desire to show that  $\mathfrak{A} = \mathfrak{A}'$ . Since always  $\mathfrak{A} \subseteq \mathfrak{A}'$  we need only verify  $\mathfrak{A}' \subseteq \mathfrak{A}$ . Thus let  $T \in \mathfrak{A}'$ . This  $T$  commutes with  $A$ . Since the spectrum of  $A$  is simple  $T$  is a function of  $A$ <sup>8)</sup>, consequently it is contained in  $\mathfrak{A}$ . Thus we have verified  $\mathfrak{A}' \subseteq \mathfrak{A}$ . Therefore  $\mathfrak{A}' = \mathfrak{A}$  and  $\mathfrak{A}$  is maximal abelian.

Next let us assume that  $\mathfrak{A}$  is maximal abelian and  $A$  one of its generating operators. We desire to show that the spectrum of  $A$  is simple, that is that there exists a generating element  $g$  such that the linear manifold is everywhere dense in  $\mathfrak{H}$ . We note by  $[\mathfrak{A}g]$  the closure of the linear manifold generated by  $g$  and our aim is to show  $[\mathfrak{A}g] = \mathfrak{H}$ .

Let us begin with an arbitrary  $g_1 \in \mathfrak{H}$ ,  $\|g_1\| = 1$ . Denote by  $M_1 = [\mathfrak{A}g_1]$  the closure of the linear manifold generated by  $g_1$ . If  $M_1 = \mathfrak{H}$  we are finished with  $g = g_1$ . If  $M_1 \subset \mathfrak{H}$ , denote by  $P_1$  the projection with range  $M_1$ . Since  $\mathfrak{A}$  contains the unit element  $0 < P_1$ .

The projection  $P_1$  reduces  $\mathfrak{A}$ , this means it belongs to  $\mathfrak{A}'$ . In order to show this we verify that  $M_1$  and  $M_1^\perp$  are separately left invariant under the operators in  $\mathfrak{A}$ . For  $M_1$  this is an immediate consequence of the definition. For  $M_1^\perp$  we assume  $f \in M_1^\perp$ ,  $g \in M_1$  and  $T \in \mathfrak{A}$  arbitrary. By definition of  $g$  we have  $g = Sg_1$  with some  $S \in \mathfrak{A}$ , and so we find

$$(g, Tf) = (Sg_1, Tf) = (T^* Sg_1, f)$$

Since  $\mathfrak{A}$  is a  $*$ -algebra  $T^\perp S \in \mathfrak{A}$  and therefore

$$T^* Sg_1 \in M_1. \text{ Hence}$$

$$(T^* Sg_1, f) = 0$$

and thus for arbitrary  $g \in M_1$

$$(g, Tf) = 0$$

Therefore  $Tf \in M_1^\perp$ . This means  $P_1$  commutes with  $T$  and since  $T$  is arbitrary  $\in \mathfrak{A}$  we have  $P_1 \in \mathfrak{A}'$ . Since  $\mathfrak{A}$  is maximal abelian  $\mathfrak{A} = \mathfrak{A}'$  and it follows that  $P_1 \in \mathfrak{A}$ .

Now let  $g_r$  be a normalized maximal set of generating elements\*) for the orthogonal subspaces.  $M_r = [\mathfrak{A}g_r]$ . The corresponding projections  $P_r$  are then mutually orthogonal. Let  $P = \bigcup_r P_r$  be the least upper bound of these projections. Because of the maximal properties of  $g_r$ ,  $P = I$ .

If now the set of elements  $g_r$  is finite, we have a generating element with  $g = \sum g_r$ . If their number is infinite it is countably infinite because

\*) This is the non-trivial part of the proof. The existence of the required maximal set of  $g_r$  in the stated properties is guaranteed only by virtue of ZORN's lemma, which in turn is equivalent to the axiom of choice. This appeal to the famous transfinite axiom at this point is essential and unavoidable.

the Hilbert space  $\mathfrak{H}$  is separable. We choose an arbitrary sequence of positive numbers  $a_r > 0$  such that

$$\sum_r a_r^2 < \infty$$

and define

$$g = \sum_r a_r g_r$$

with the finite norm

$$\|g\|^2 = \sum_r a_r^2$$

We want to show, this  $g$  is a generating element for  $\mathfrak{A}$ . Let  $f \in \mathfrak{H}$  be an arbitrary element and decompose

$$f = \sum_r f_r \quad f_r = P_r f.$$

Given  $\varepsilon > 0$  we must find  $T \in \mathfrak{A}$  such that

$$\|f - Tg\| < \varepsilon$$

Choose first an  $N$  such that

$$\sum_{r=N+l}^{\infty} \|f_r\|^2 < \frac{\varepsilon}{2}$$

Since  $f_r \in M_r$  we can choose for every  $r \leq N$  a  $T_r \in \mathfrak{A}$  such that

$$\|f_r - T_r g_r\| < \frac{\varepsilon}{2N}$$

The operator

$$T = \sum_{r=1}^N T_r$$

is contained in  $\mathfrak{A}$  and for it we have

$$\|f - Tg\|^2 = \sum_{r=1}^N \|f_r - T_r g_r\|^2 + \sum_{r=N+l}^{\infty} \|f_r\|^2 \leq N \frac{\varepsilon}{2N} + \frac{\varepsilon}{2} = \varepsilon$$

Since  $\varepsilon$  is arbitrary, we have shown  $\mathfrak{H} = [Ag]$  and this shows that  $g$  is a generating element and consequently  $\mathfrak{A}$  has simple spectrum.

## 6. The Structure of the Algebra Generated by Observables

Let  $A_i$  ( $i \in I$ ) be the set of all observables of a given physical system and  $\mathfrak{N} = \{A_i\}''$  the von Neumann algebra which it generates. Much of the structure of the physical system is already contained in the structure



of the algebra  $\mathfrak{N}$ . For instance it is an essential feature of quantum mechanics that  $\mathfrak{N}$  is not an abelian algebra.

In the structure theory of such algebras the centre  $\mathfrak{Z}$  plays an important role. It is defined as the set of elements in  $\mathfrak{N}$  which commute with all elements of  $\mathfrak{N}$ .

$$\mathfrak{Z} = \mathfrak{N} \cap \mathfrak{N}' \quad (6.1)$$

The centre is always an abelian subalgebra of  $\mathfrak{N}$ , but it is not necessarily maximal abelian. As explained in the previous section the requirement of an unambiguous representation of the physical states in terms of state vectors involves the existence of a maximal abelian algebra  $\mathfrak{A}$  contained in  $\mathfrak{N}$ . From  $\mathfrak{A} \subset \mathfrak{N}$  follows

$$\mathfrak{N}' \subset \mathfrak{A}'$$

and since  $\mathfrak{A}' = \mathfrak{A}$  we have  $\mathfrak{N}' \subset \mathfrak{A} \subset \mathfrak{N}$ .

This says first of all that the commutant of  $\mathfrak{N}$  is abelian and secondly that every operator in the commutant of  $\mathfrak{N}$  is a function of observables and hence, if it is self-adjoint, itself an observable. A consequence of this is that the centre  $\mathfrak{Z}$  is identical with  $\mathfrak{N}'$

$$\mathfrak{Z} = \mathfrak{N}' \quad (6.2.)$$

In order to progress further with the structure theory of  $\mathfrak{N}$  we make use of the theory of the direct integral of Hilbert spaces. This is a generalization of the concept of the direct sum and will be very briefly outlined here<sup>9</sup>). No proofs will be given, they are found in the references of footnote 9.

Let  $\sigma(\lambda)$  ( $-\infty < \lambda < +\infty$ ) be a function with the following properties

- (i)  $\sigma(\lambda)$  is real ( $-\infty < \lambda < +\infty$ )
- (ii)  $\lambda_1 \leq \lambda_2$  implies  $\sigma(\lambda_1) \leq \sigma(\lambda_2)$
- (iii)  $\sigma(\lambda + 0) = \sigma(\lambda)$
- (iv)  $\sigma(-\infty) = 0, \sigma(+\infty) = 1$ .

Such a function determines a certain class of sets  $K$  on the real  $\lambda$ -axis which are called  $\sigma$ -measurable sets. For them a measure is defined  $\mu(K)$  with the property

$$\mu(K_1) + \mu(K_2) = \mu(K_1 \cup K_2) + \mu(K_1 \cap K_2)$$

Every half open interval  $[\alpha, \beta]$  is measurable and its measure is given by any set which is built up from such intervals by the formation of unions, intersections and complements in a countable sequence of steps. Thus all Borel sets are measurable.

With this measure one can develop an integration theory in a standard fashion. The integral thus defined is called the Lebesgues-Stieltjes integral.

Let  $n(\lambda)$  be a measurable function from the real to the positive integers  $\leq \infty$  and let there be given for each  $\lambda$  a Hilbert space  $\mathfrak{H}(\lambda)$  of dimension  $n(\lambda)$ . From every space  $\mathfrak{H}(\lambda)$  select an element  $f(\lambda)$  in such a way that  $\|f(\lambda)\|^2$  is  $\sigma$ -measurable and

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \|f(\lambda)\|^2 d\sigma(\lambda) < \infty$$

A family of such sets of elements, with the property that for any two of them  $f = \{f(\lambda)\}$  and  $g = \{g(\lambda)\}$  the function  $(f(\lambda), g(\lambda))$  is  $\sigma$ -measurable, form a Hilbert space  $\mathfrak{H}$  called the *direct integral* of the  $\mathfrak{H}(\lambda)$  and denoted by

$$\mathfrak{H} = \int_{\oplus}^{\infty} \mathfrak{H}(\lambda) \sqrt{d\sigma(\lambda)} \quad (6.3)$$

The linear operations which make this a vector space are defined as

$$\left. \begin{aligned} \alpha f &= \{\alpha f(\lambda)\} \quad \alpha \text{ complex} \\ f + g &= \{f(\lambda) + g(\lambda)\} \end{aligned} \right\} \quad (6.4)$$

The scalar product of two elements  $f$  and  $g$  is

$$(f, g) = \int_{-\infty}^{+\infty} (f(\lambda), g(\lambda)) d\sigma(\lambda) \quad (6.5)$$

Two decompositions (6.3) with component spaces  $\mathfrak{H}(\lambda)$  and  $\mathfrak{H}'(\lambda)$  and density functions  $\sigma(\lambda)$  and  $\sigma'(\lambda)$  are considered equivalent if the spaces  $\mathfrak{H}(\lambda)$  differ from  $\mathfrak{H}'(\lambda)$  on at most a set of  $\sigma$ -measure zero, and if  $\sigma(\lambda)$  and  $\sigma'(\lambda)$  are absolutely continuous with respect to one another. This latter condition means that every  $\sigma$ -measurable set of  $\sigma$ -measure zero is also  $\sigma'$ -measurable of  $\sigma'$ -measure zero and vice versa.

As usual the words 'almost' or 'essentially' are used to express a property which holds with the exception of a set of  $\sigma$ -measure zero.

To every essentially bounded  $\sigma$ -measurable function  $\phi(\lambda)$  there is associated a linear operator  $L_{\phi}$  in  $\mathfrak{H}$  such that

$$L_{\phi} f = \{\phi(\lambda) f(\lambda)\} \quad (6.6)$$

The set of operators of this kind for all  $\sigma$ -measurable essentially bounded functions  $\phi(\lambda)$  form an algebra and one can show that it is a weakly closed abelian \*-algebra. This is just the kind of algebra which we have been considering in connection with the sets of commuting observables.

The full significance of the direct integral for our purpose is brought out in the converse of this connection contained in the following theorem<sup>10)</sup>

Every weakly closed abelian \*-algebra  $\mathfrak{A}$  of bounded operators in  $\mathfrak{H}$  determines almost uniquely a decomposition of  $\mathfrak{H}$  into a direct integral (6.3) in such a way that  $\mathfrak{A}$  consists exactly of the operators of the form  $L_\phi$  where  $\phi(\lambda)$  is a  $\sigma$ -measurable function of  $\lambda$ .

Using this theorem we can give a decomposition of the algebra into an almost uniquely determined direct integral.

Let  $\mathfrak{Z} = \mathfrak{N} \cap \mathfrak{N}'$  be the centre of  $\mathfrak{N}$ . It is abelian and determines a direct integral (6.3) of Hilbert spaces  $\mathfrak{H}(\lambda)$ . Let us examine the structure of the operators in  $\mathfrak{N}$  in this decomposition. The relevant theorem is the following:

Every bounded operator  $A$  which commutes with all the operators in  $\mathfrak{Z}$  can be represented in the form

$$Af = \{A(\lambda) f(\lambda)\}$$

where  $A(\lambda)$  is a family of operators with the following two properties.

(a)  $A(\lambda)$  is measurable: This means  $A(\lambda)$  is defined almost everywhere with respect to  $\sigma$  and for all  $f = \{f(\lambda)\}$  and  $\{A(\lambda) f(\lambda)\} \in \mathfrak{H}$ .  $A(\lambda) f(\lambda)$  is defined for almost all  $\lambda$ .

(b)  $A(\lambda)$  is essentially bounded, meaning, there exists a number  $M < \infty$  such that the sets of  $\lambda$  for which  $\|A(\lambda)\| > M$  is of  $\sigma$ -measure zero.

As  $A$  runs through the algebra  $\mathfrak{N}$  the operators  $A(\lambda)$  run through an algebra  $\mathfrak{N}(\lambda)$ . What can we say about the structure of the algebras  $\mathfrak{N}(\lambda)$ ?

The following theorem gives the answer to this question: The family  $\mathfrak{N}(\lambda)$  is irreducible for almost all  $\lambda$  if and only if  $\mathfrak{Z}$  is a maximal abelian subalgebra of  $\mathfrak{N}'$ .

Thus in order to verify that  $\mathfrak{N}(\lambda)$  is irreducible for almost all  $\lambda$  it suffices to verify that  $\mathfrak{Z}$  is maximal abelian in  $\mathfrak{N}'$ . This is very easy in our case since we have previously shown that  $\mathfrak{Z} = \mathfrak{N}'$  (cf. equation (6.2)).

With this result we have obtained the complete structure theory of the observables in a physical system.

In order to clarify the physical significance of this result we consider an arbitrary normalized element  $\psi \in \mathfrak{H}$  representing a state of the system. Let  $\mathfrak{N}$  be the von Neumann algebra of bounded operators generated by the observables of the system,  $\mathfrak{H}(\lambda)$  the component space in the essentially unique direct integral with respect to the centre  $\mathfrak{Z}$  of  $\mathfrak{N}$  and  $\psi(\lambda) \in \mathfrak{H}(\lambda)$  the component vector of  $\psi$  in the space  $\mathfrak{H}(\lambda)$ .

Let  $U$  be a unitary operator in  $\mathfrak{N}'$ . Since every operator in  $\mathfrak{N}'$  is also in the centre of  $\mathfrak{N}$ ,  $U$  must be of the form  $U = L_\phi$

$$U\psi = L_\phi\psi = \{\phi(\lambda)\psi(\lambda)\}$$

with some  $\sigma$ -measurable function  $\phi(\lambda)$  satisfying  $|\phi(\lambda)| = 1$ .

Let  $A \in \mathfrak{N}$  be any observable and consider the expectation value of  $A$  in the state  $U\psi$

$$(U\psi, AU\psi) = (\psi, U^*AU\psi) = (\psi, U^*UA\psi) = (\psi, A\psi)$$

Thus we see the expectation value of any observable is invariant under the transformation  $U$ . This means that it is impossible to distinguish any physical properties on the states represented by  $\psi$  and  $U\psi$ . Another way of saying this is:

*The relative phases of the vectors in the different component spaces cannot be measured.*

As was shown in  $W^3$  this is the characteristic property of a *superselection rule*.

We have thus obtained the most general structure of the space of state vectors in a physical system with superselection rules.

In the special case that  $\sigma(\lambda)$  is a discontinuous function with a finite or countable number of discontinuities then the measure induced by  $\sigma$  is discrete and the direct integral (6.3) becomes a direct sum of a finite or countably infinite set of orthogonal subspaces. This is the case discussed in  $W^3$ .

## 7. Concluding Summary

For convenience we summarize the results obtained in the preceding sections.

1. The observables of a physical system are self adjoint linear operators in a Hilbert space which generate a von Neumann algebra  $\mathfrak{N}$  of bounded operators.  $\mathfrak{N}$  is irreducible if and only if there are no superselection rules operating on the system.

2. A set of commuting observables generates an abelian subalgebra  $\mathfrak{A} \subset \mathfrak{N}$ .  $\mathfrak{A}$  is maximal abelian if and only if the operators in  $\mathfrak{A}$  are generated by a single observable with *simple* spectrum. In that case we say is generated by a *complete* set of commuting observables.

3. Assuming the existence of at least one complete set of commuting observables one can show that there exists an essentially unique decomposition of the Hilbert space  $\mathfrak{H}$  into a direct integral of component spaces  $\mathfrak{H}(\lambda)$  in such a manner that the operators of  $\mathfrak{N}$  induce on  $\mathfrak{H}(\lambda)$  an *irreducible* operator algebra.

4. The component vectors of  $\psi(\lambda)$  of a state vector  $\psi \in \mathfrak{H}$  correspond to the separation of  $\mathfrak{H}$  into superselection subspaces in the sense that there exists no physical measurement which will give any information on the relative phase of the different components.

## References

- 1) G. C. WICK, A. S. WIGHTMAN, and E. P. WIGNER, Phys. Rev. 88, 101 (1952). This paper is referred to as  $W^3$ .
- 2) L. L. FOLDY, Phys. Rev. 93, 1395 (1954).
- 3) W. PAULI, Handbuch der Physik, Vol. 5, (1958). p. 72.
- 4) P. A. M. DIRAC, The Principles of Quantum Mechanics, 3rd edition, p. 57.
- 5) J. DIXMIER, «Les algèbres de VON NEUMANN dans l'espace hilbertien», Cahiers scientifiques, fasc. XXV (Gauthier-Villars, Paris 1958). This work contains the most complete list of references on this subject.
- 6) J. VON NEUMANN, Annals of Math. 32, 191 (1931).
- 7) This theorem is due to RIESZ and VON NEUMANN cf. N. I. ACHIESER and I. M. GLASMANN, *Theorie der linearen Operatoren im Hilbert Raum*, p. 220 Akademie Verlag, 1958.
- 8) Cf. N. I. ACHIESER and I. M. GLASMANN, loc. cit. section 75, theorem 1, p. 220.
- 9) The theory of the direct integral was developed by VON NEUMANN in 1937 and published in Ann. of Math. 50, 401 (1949). See also R. GODEMENT, Ann. of Math. 53, 68 (1951), and M. A. NEUMARK and S. V. FOMIN, Uspekhi Mat. Nauk 10, No. 2 (64) 111 (1955). (Translated into English in Am. Math. Soc. Trans. Series 2, Vol. 5, 1957.)
- 10) J. VON NEUMANN, loc. cit. ref.<sup>9</sup>).



## Quantum Theory in Real Hilbert Space

by E. C. G. Stueckelberg\*)

(Universities of Geneva and Lausanne)

*Abstract.* Relativistic Quantum Theory is brought to a form, where all operators, including time reversal, are linear: Hilbert space is real. Instead of the imaginary number  $i = \sqrt{-1}$ , an operator  $\hat{J}$  ( $\hat{J}^2 = -1$ ) is introduced, which commutes with all observables and with the orthogonal operators representing ortho-chronous Lorentz transformations, and anti-commutes with the orthogonal representation of pseudo-chronous Lorentz transformations. It is shown, that  $\hat{J}$  is necessary in order to have an uncertainly principle (§ 2). Furthermore it follows that momentum-energy and angular momentum-centre of energy are pseudo-chronous quantities. Therefore, the Hamiltonian operator does not change sign under time reversal (§ 5). Lorentz transformations are considered as passive (= coordinate frame-) transformations (§ 7).

In the annexes the following topics are discussed: A possible generalisation of quantum theory involving non linear operators (A-1); The dictionary between conventional theory in complex Hilbert space and the proposed formalism in real Hilbert space (A-2) and (A-3); The dictionary between a quantum theory in quaternion Hilbert space and our real theory (A-4). Also an error, frequently found in literature, concerning the representation of the Lorentz group is pointed out (A-5).

### Introduction and Conclusion

This article presents the essential of the lectures on *Relativistic Quantum Theory (QT) of Fields*, given at the universities of Geneva and Lausanne during the past 20 years. The problem was to show students, *why the imaginary unit enters quantum theory*. We start therefore from a theory built entirely upon *real numbers* and are lead to introduce an operator  $J$  (with  $J^2 = -1$ ), in order to have an *uncertainty principle* (UP) between the *mean square errors*  $\langle \Delta F^2 \rangle$  and  $\langle \Delta G^2 \rangle$  of two observables  $F$  and  $G$ . Observables are *symmetric tensors* (or *symmetric linear operators*) in real Hilbert space (RHS)  $F_{ab} = F_{ba}$ , or

$$F^T = F, G^T = G, \dots \quad (0.1)**)$$

\*) Supported by the Swiss National Research Fund.

\*\*)  $A^T$  is the *transposed operator*:  $A_{ab}^T = A_{ba}$ , which plays the analogous role as the *hermitian conjugate*  $\hat{A}^\dagger$  ( $\hat{A}_{pq}^\dagger = \hat{A}_{qp}^*$ ) in *Complex Hilbert Space* (CHS), see Annex (A-2).

The criterium for the impossibility of measuring  $F$  and  $G$  simultaneously, is a non vanishing commutator

$$FG - GF = [F, G] = -[F, G]^T \neq 0. \quad (0.2)$$

The expectation value  $\langle [F, G] \rangle$  vanishes, because  $[F, G]$  is an *antisymmetric tensor*. Therefore, only the *positive definit observable*

$$P = -[F, G]^2 = P^T \quad (0.3)$$

can occur in

$$\langle \Delta F^2 \rangle \langle \Delta G^2 \rangle \geq \lambda^2 \langle P \rangle. \quad (0.4)$$

$\lambda$  is a real number. *Unless otherwise mentioned* (Annexes (A-2), (A-3) and (A-4)) *all numbers occurring in this paper are real*.

We show, that this uncertainty principle leads to a contradiction, unless  $\lambda^2 = 0$ , in which case (0.4) is a triviality. We show, in § 2, that the only other possibility consists in introducing an *antisymmetric operator*  $J_{(FG)}$  which has an inverse  $J_{(FG)}^{-1}$  (and may therefore, without loss of generality, be normalised to  $-1$ ) and which commutes with  $F$  and  $G$ .

$$J_{(FG)}^T = -J_{(FG)}, \quad J_{(FG)}^2 = -J_{(FG)}^T J_{(FG)} = -1 \quad (0.5)$$

$$[J_{(FG)}, F] = [J_{(FG)}, G] = 0. \quad (0.6)$$

We may now form the symmetrical operator

$$C_{(FG)} = J_{(FG)} [F, G] = C_{(FG)}^T \quad (0.7)$$

and expect a uncertainty principle of the form

$$\langle \Delta F^2 \rangle \langle \Delta G^2 \rangle \geq \lambda^2 \langle C_{(FG)} \rangle^2. \quad (0.8)$$

Let  $H$  be a third observable.  $C_{(FG)}$  being an observable,  $J_{(CH)}$  has to commute with  $C_{(FG)}$  and  $H$ . Thus, the simplification to assume but one universal

$$J_{(FG)} = J \quad (0.9)$$

*commuting with all observables*, seems natural.

FINHELSTEIN, JAUCH and SPEISER<sup>3</sup>) have shown that only three possibilities: RHS, CHS (Complex Hilbert Space) and QHS (Quaternion Hilbert Space) are possible in Quantum theory ( $QT$ ). Thus three anti-commuting  $J$ 's ( $J_1, J_2, J_3$ ) may exist. We have analysed QHS in terms of RHS in the annex (A-4).

We begin (§ 1) by an analysis of probability, which leads us necessarily to RHS. The linearity of the operators is a further assumption, which

may eventually be omitted, because classical statistical mechanics does not necessarily require the Jakobenian cyclic identity, but may give

$$\overrightarrow{FGH} \{F, \{G, H\}\} \neq 0 \quad (0.10)*$$

for the generalised Poisson brackets (see annex (A-1) and 2)).

Therefore, the corresponding identity for linear operators

$$\overrightarrow{FGH} J [F, J [G, H]] = 0 \quad (0.10J)$$

may not hold. In § 2 we discuss the uncertainty principle (UP). In § 3 we introduce the representation of the linear group  $\{L\}$  (which leaves the metric tensor  $g^{\alpha\beta} = g^{\alpha\beta}***)$  invariant) by orthogonal operators  $O$  in RHS:

$$O^T = O^{-1}, \quad L \rightarrow e^{J \cdot \lambda} O. \quad (0.11)$$

In § 4 we show, that the metric  $g^{\alpha\beta}$  of the differential manifold  $x = \{x^\alpha\}$ ,  $\alpha, \beta \dots = 1, 2, \dots, n$ , has necessarily the *thermodynamic signature* (STUECKELBERG and WANDERS<sup>4)5)</sup>) if the existence of *fundamental state*  $\Psi^{(0)}$ , the *vacuum*, is postulated:

$$\text{signat} (g^{\alpha\beta}) = \pm (1, 1, \dots, 1, -1). \quad (0.12)$$

This gives a preference to one coordinate  $x^n = t$ , the time. Thus,  $\{L\}$  is the *full Lorentz group in  $n$ -dimensional space* (including time reversal  $L = T$ ).

Furthermore it is shown, that  $J = \check{J}$  is a *pseudochronous operator*

$$\check{J} = O^{-1} \check{J} O = \text{sig} (L'^n_n) \check{J} \quad (0.13)***$$

$$\text{if } 'x'^\alpha = L'^\alpha_\alpha (x^\alpha + L^\alpha) : 'x = Lx; \det (L'^\alpha_\alpha) \neq 0 \quad (0.14)****$$

$$\text{satisfies } g'^\alpha{}_\beta = L'^\alpha_\alpha L'^\beta_\beta g^{\alpha\beta}. \quad (0.15)$$

*Multilocal ortho-chronous observables* transform according to

$$\left. \begin{aligned} 'F'^{\alpha\beta\gamma\dots} ('x' y \dots) &= L'^\alpha_\alpha L'^\beta_\beta \dots F^{\alpha\beta\gamma\dots} (L^{-1} 'x L^{-1} 'y \dots) \\ &= O^{-1} F'^{\alpha\beta\gamma\dots} ('x' y \dots) O \end{aligned} \right\} \quad (0.16)$$

while *pseudo-chronous quantities* transform according to

$$'F'^{\alpha\dots} ('x \dots) = \text{sig} (L'^n_n) L'^\alpha_\alpha \dots \check{F}^\alpha (L^{-1} 'x \dots) = O^{-1} \check{F}^{\alpha\dots} ('x \dots) O \quad (0.17F)$$

\*)  $\overrightarrow{ABC}$  stands for the cyclic sum.

\*\*)  $F^{\alpha\beta\gamma\dots}$  is a totally symmetric tensor, while  $F^{\alpha\beta\gamma\dots}$  is a totally antisymmetric tensor in  $\alpha$ -space.

\*\*\*)  $\text{sig} (\lambda)$  is the sign function  $\text{sig} (\lambda) = \pm 1$  for  $\lambda \gtrless 0$ .

\*\*\*\*) Frame transformations are written with the primes to the left:  $'x'^\alpha \leftarrow x^\alpha; '\Psi'_a \leftarrow \Psi_a$ .

We shall later\*) also use *pseudo-chorous quantities*, which transform according to ( $ik \dots = 1 \ 2 \dots n - 1$ )

$$\left. \begin{aligned} \hat{F}'^{\alpha\dots} ('x\dots) &= \text{sig}(\det(L'^i{}_i)) L'^{\alpha}{}_{\alpha\dots} \hat{F}^{\alpha\dots} (L^{-1}{}^i{}_i 'x\dots) \\ &- O^{-1} \hat{F}'^{\alpha\dots} ('x\dots) O \end{aligned} \right\} \quad (0.17\hat{F})$$

and finally *pseudo-quantities*  $\overset{\circ}{F} = \overset{\circ}{F}$ :

$$\left. \begin{aligned} \overset{\circ}{F}'^{\alpha\dots} ('x\dots) &= \text{sig}(\det(L'^{\alpha}{}_{\alpha})) L'^{\alpha}{}_{\alpha\dots} \overset{\circ}{F}^{\alpha\dots} (L^{-1}{}^i{}_i 'x\dots) \\ &= O^{-1} \overset{\circ}{F}'^{\alpha\dots} ('x\dots) O. \end{aligned} \right\} \quad (0.17\overset{\circ}{F})$$

Let us remark, that we consider (§§ 3, 4 and 5)  $L$  always as *passive transformations*. As a matter of fact, we show (§ 7), that this *passive point of view* is perfectly reasonable in QT, because a statistical analysis of observations at two epochs  $t'$  and  $t''$ , is independent of whether  $t''$  is later or earlier than  $t'$  in the *thermodynamic time scale* ( $\check{S}(t'') > \check{S}(t')$ ;  $\check{S}(t) = \text{entropy} > 0$ , at epoch  $t$ , cf. 4) and 6)7)).

In § 5 we analyse the infinitesimal group  $L(\delta\lambda \cdot \delta\omega^{(\dots)})$

$$'x'^{\alpha} = x'^{\alpha} + \delta\lambda'^{\alpha} + \delta\omega'^{\alpha}{}_{\alpha} x^{\alpha} = x'^{\alpha} + \delta\lambda'^{\alpha} + \frac{1}{2} \delta\omega^{[\mu\nu]} \Sigma_{\mu\nu}{}^{\alpha}{}_{\alpha} x^{\alpha} \quad (0.18)$$

$$\Sigma_{\mu\nu}{}^{\alpha}{}_{\alpha} = \Sigma_{[\mu\nu]}{}^{\alpha}{}_{\alpha} = \delta_{\mu}^{\alpha} g_{\nu\alpha} - \delta_{\nu}^{\alpha} g_{\mu\alpha} \quad (0.19)$$

generating the continuous group  $\{L_{(\text{cont})}\}$ . The generators of the corresponding Lie group  $\{O\}$ , with  $n + (1/2)n(n-1)$ , parameters  $\lambda^{\mu}$  and  $\omega^{\mu\nu} = \omega^{(\mu\nu)}$  are  $-\check{J}\check{\Pi}_{\mu}$  and  $\check{J}\check{M}_{\mu\nu} = \check{J}\check{M}_{[\mu\nu]}$ . The pseudo-chorous observables are the *pseudo-chorous momentum-energy vector*  $\check{\Pi}_{\mu}$  and the *pseudo-chorous angular momentum-centre of energy tensor*  $\check{M}_{\mu\nu}$ . We arrive at the relation

$$(\partial_{\mu}^x + \partial_{\mu}^y + \dots) F^{\alpha\dots} (xy\dots) = -\check{J}[\check{\Pi}_{\mu}, F^{\alpha\dots} (xy\dots)] \quad (0.20)$$

$$\left. \begin{aligned} &([x_{\mu}, \partial_{\nu}^x] + [y_{\mu}, \partial_{\nu}^y] + \dots) \delta_{\alpha'}^{\alpha} \delta_{\beta'}^{\beta} \dots + \Sigma_{\mu\nu}{}^{\alpha}{}_{\alpha'} \delta_{\beta'}^{\beta} \dots \\ &+ \delta_{\alpha'}^{\alpha} \Sigma_{\mu\nu}{}^{\beta}{}_{\beta'} \dots + \dots) F^{\alpha'\beta'\dots} (xy\dots) = -\check{J}[\check{M}_{\mu\nu}, F^{\alpha'\beta'\dots} (xy\dots)]. \end{aligned} \right\} \quad (0.21)$$

From the structure relation of the generators of  $\{L_{(\text{cont})}\}$  ( $-\partial_{\mu}$  and  $N_{\mu\nu}{}^{\alpha}{}_{\alpha'} = [x_{\mu}, \partial_{\nu}] \delta_{\alpha'}^{\alpha} + \Sigma_{\mu\nu}{}^{\alpha}{}_{\alpha'}$ ), the commutation relations

$$\check{J}[\check{\Pi}_{\mu}, \check{\Pi}_{\nu}] = 0 \quad (0.22)$$

\*) In a following article on *real representations of the spinor group*  $\{\pm \delta_B^A, \pm \gamma^{\alpha A}{}_B, \pm \gamma^{[\alpha, \alpha_2] A}{}_B, \dots, \pm \gamma^{[\alpha, \dots, \alpha_n] A}{}_B\}$ .

$$\int \check{M}_{\mu\sigma} \check{M}_{\sigma\tau} = - \xi_{\mu\sigma} \check{M}_{\tau\sigma} - \xi_{\tau\sigma} \check{M}_{\mu\sigma} - \xi_{\mu\tau} M_{\sigma\sigma} - \xi_{\sigma\tau} M_{\mu\mu} \tag{0.23}$$

$$\int [\check{\Pi}_{\mu\sigma} M_{\sigma\tau}] = \xi_{\mu\sigma} \Pi_{\tau\sigma} - \xi_{\sigma\tau} \check{\Pi}_{\mu\sigma} \tag{0.24}$$

follow\*).

In § 6, we show, that  $\check{\Pi}_{\mu\sigma}$  and  $\check{M}_{\mu\sigma}$  can be expressed in terms of an ortho-chronous observable, the *momentum energy tensor*

$$\Theta^{\alpha\beta}(x) = \Theta^{(\alpha\beta)}(x), \quad \partial_x \Theta^{\alpha\beta}(x) = 0 \tag{0.25}$$

as integrals over a surface  $\tau(x) = 0$ , whose surface element  $d\check{\sigma}_2(x)$  is a *time-like pseudo-chronous vector* (signat  $(\check{g}^{22}) = \{1.1 \dots 1 - 1\}$ )

$$d\check{\sigma}_2(x) d\check{\sigma}^2(x) < 0; \quad d\check{\sigma}_n(x) > 0 \tag{0.26}$$

$$\Pi^\mu = \int_{\tau(x)=0} d\check{\sigma}_2 \Theta^{\mu\alpha}(x); \quad \check{M}^{\mu\sigma} = \int_{\tau(x)=0} d\check{\sigma}_2 [x^\mu \Theta^{\sigma\alpha} - x^\sigma \Theta^{\mu\alpha}](x). \tag{0.27}$$

In the annexes, we consider *classical statistical mechanics* with  $F, G, H \in \{F, G, H\} = 0$  (A-1), *hermitian CHS* (A-2), *unitary and antiunitary transformations*  $U$  and  $V$  in CHS (A-3), *quaternion Hilbert space (QHS)* in (A-4), and an *error frequently found in literature* due to a wrong definition of the representation  $O$  (in RHS) or  $U$  (in CHS) (A-5).

§ 1. Analysis of Probability

Let  $F$  and  $G$  be two observables, whose spectra, assumed discrete, are

$$F: \{F^{(n)}\} = \{F^{(1)} < F^{(2)} < \dots < F^{(n)} < \dots < F^{(\infty F)}\} \tag{1.1F}$$

$$G: \{G^{(k)}\} = \{G^{(1)} < G^{(2)} < \dots < G^{(k)} < \dots < G^{(\infty G)}\} \tag{1.1G}$$

and let  $W^{(n)}$ , resp.  $W^{(k)}$  be the probabilities that  $F$  takes the value  $F^{(n)}$  (resp.  $G$  the value  $G^{(k)}$ )

$$W^{(n)}, W^{(k)} > 0 \quad \sum_i W^{(n)} = \sum_k W^{(k)} = 1. \tag{1.2}$$

Then we may, without loss of generality, write  $W^{(n)}$  as a sum of squares

$$W^{(n)} = \sum_{\alpha=1}^{\alpha=\omega_n} \Psi_{i\alpha}^2; \quad W^{(k)} = \sum_{\beta=1}^{\beta=\omega_k} \Psi_{k\beta}^2, \tag{1.3}$$

which introduces an  $\omega_n$ - (resp.  $\omega_k$ -) fold degeneracy of the spectral term  $F^{(n)}$  (resp.  $G^{(k)}$ ). Now let us introduce two indices  $a$  and  $b$ :

\*| Due to a wrong sign in the representation  $L \rightarrow \check{A}A(t)$  these commutations relation are frequently wrong in several books on QT of fields (see Annex (A-5)).



$$\left. \begin{aligned} a \ b \ \dots &= 1 \ 2 \ \dots \sum \omega_i = 1 \ 2 \ \dots \omega_R \\ 'a \ 'b \ \dots &= '1 \ '2 \ \dots \sum ' \omega_k = '1 \ '2 \ \dots ' \omega_R \end{aligned} \right\} \quad (1.4)$$

and write the degeneracies in the form

$$F^{(a)} = F^{(i\alpha)}, \quad F^{(i\alpha)} = F^{(i)} \quad G^{('a)} = G^{(k\beta)}, \quad G^{(k\beta)} = G^{(k)}. \quad (1.5)$$

Now we may choose the arbitrary large numbers  $\omega_R$  and  $'\omega_R$  equal, and represent  $\Psi_a = \Psi_{i\alpha}$ , and  $'\Psi_a = '\Psi_{k\beta}$  as components of the same abstract vector  $\Psi$  (state vector), referred to two different orthogonal coordinate frames in an Euclidian space of  $\omega_R = '\omega_R$  dimensions. In general, this number  $\omega_R$  will be infinite. Therefore, we call this space the *Real Hilbert Space* (RHS). The two sets of components are related to each other by an orthogonal matrix  $O = \{O_{aa'}\}$ .

Using the summation convention, we write:

$$' \Psi_a = O_{aa'} \Psi_{a'}; \quad ' \Psi = O \Psi; \quad O^T = O^{-1} \quad (1.6)$$

the expectation values are now

$$\langle F \rangle_\Psi = \sum_i W^{(i)} F^{(i)} = \Psi_a F_{ab} \Psi_b \equiv (\Psi, F \Psi) \quad (1.7)$$

$$F_{ab} = F^{(a)} \delta_{ab} \quad (1.8)$$

$$\langle G \rangle_\Psi = \sum_k W^{(k)} G^{(k)} = '\Psi_a 'G_{a'b} '\Psi_b = \Psi_a G_{ab} \Psi_b \equiv (\Psi, G \Psi) \quad (1.9)$$

$$'G_{a'b} = G^{('a)} \delta_{a'b}; \quad G_{ab} = O_{a'a'}^T 'G_{a'b} O_{bb} \quad (1.10)$$

where

$$(\Phi, \Psi) = (\Psi, \Phi) = \Phi_a \Psi_a = '\Psi_a ' \Phi_a \quad (1.11)$$

is the scalar product between vectors in RHS.  $F$ ,  $G$  and all observables are symmetrical tensors in RHS:

$$F^T = F, \quad G^T = G, \quad H^T = H, \dots \quad (1.12)$$

In the  $a$ -frame,  $F$  is diagonal (1.8) and in the  $'a$ -frame  $'G$  is diagonal (1.10). The transposed operator of an operator  $A$ ,  $A = \{A_{ab}\}$  is defined by

$$(\Phi, A \Psi) = (A^T \Phi, \Psi); \quad A_{ab}^T = A_{ba}. \quad (1.13)$$

Now,  $F$  and  $G$  are two tensor ellipsoids in RHS or  $a$ -space: The length of their principal axes are given by the spectra (1.1F) and (1.1G). The length of the axes are thus independent of the orientation of the  $a$ -space vector  $\Psi$ . However the relative orientation of the two ellipsoids  $F$  and  $G$  i. e. the relative orientation of the  $a$ -frame and  $'a$ -frame in abstract RHS is not necessarily independent of  $\Psi$ . Thus,  $O = \{O_{aa'}\}$  may depend on  $\Psi$ . This introduces the possibility of assuming  $F$  and  $G$  to be more general operators than linear ones<sup>2)</sup> (see (0.10) (0.10f) and Annex (A-1)).

## § 2. The Uncertainty Principle

In order to express the uncertainty principle (UP), we introduce in (0.4) the error operators

$$\Delta F = F - 1 \langle F \rangle_{\Psi}; \quad \Delta G = G - 1 \langle G \rangle_{\Psi} \quad (2.1)$$

from which we form the *mean square errors*  $\langle \Delta F^2 \rangle_{\Psi}$  and  $\langle \Delta G^2 \rangle_{\Psi}$  in (0.4). There are two possibilities:

$$\langle \Delta F^2 \rangle_{\Psi} \langle \Delta G^2 \rangle_{\Psi} \geq \begin{cases} \lambda^2 \langle P \rangle_{\Psi} & (2.2P) \\ \lambda^2 \langle C \rangle_{\Psi}^2 & (2.2C) \end{cases}$$

where  $P$  is a positive observable of dimension  $[F]^2 [G]^2$  and  $C$  is an observable of dimension  $[F] [G]$ .  $\lambda$  is a number to be determined.

Let us demonstrate, that the first choice (0.4) or (2.2P) leads to a contradiction: We express (2.2P) or (0.3), (0.4) in the  $a$ -frame, where  $F$  is diagonal. Then, if  $[F, G] \neq 0$ ,  $G$  has nondiagonal elements in this frame. Suppose further that  $F$  has the value  $F^{(a')}$  i.e.  $\Psi_a - \Psi'_a = \pm \delta_{aa'}$ . Then we have

$$[F, G]_{ab} = (F^{(a)} - F^{(b)}) G_{ab}; \quad G_{ab} \neq 0 \quad (2.3)$$

and (on account of  $G^T = G$ )

$$P_{ab} = -[F, G]_{ab}^2 = \sum_c (F^{(a)} - F^{(c)}) (F^{(b)} - F^{(c)}) G_{ac} G_{bc}. \quad (2.4)$$

Therefore the expectation value is

$$\langle P \rangle_{\Psi'} = \sum_c (F^{(a')} - F^{(c)})^2 (G_{a'c})^2 = (\text{finite})^2 > 0. \quad (2.5)$$

Now  $\langle \Delta F^2 \rangle_{\Psi'} = 0$ . Let the spectre of  $G$  (1.1 G) be bounded. Then we have  $\langle \Delta G^2 \rangle_{\Psi'} \leq (G^{(1)} - G^{(\omega_G)})^2 = (\text{finite})^2$  and (2.2P) (or (0.4)) reads

$$0 \cdot (\text{finite})^2 \geq \lambda^2 (\text{finite})^2 \quad (2.6)$$

which has only the trivial solution  $\lambda = 0$ , corresponding to the trivial statement

$$\langle \Delta F^2 \rangle_{\Psi} \langle \Delta G^2 \rangle_{\Psi} \geq 0 \quad (2.7)$$

The only other possibility, (2.2C) is to introduce an observable  $C$ , linear in  $F$  and linear in  $G$ . This implies the existence of an antisymmetric tensor in  $a$ -space  $J_{(FG)} = -J_{(FG)}^T$  commuting with  $F$  and  $G$ :

$$C = J_{(FG)} [F, G] = C^T \quad (2.8)$$

In order to deduce the UP, we form, with an arbitrary number  $\xi$ ,

$$\begin{aligned} |(\Delta F + \xi J \Delta G) \Psi|^2 &= (\Psi, (\Delta F - \xi \Delta G J) (\Delta F + \xi J \Delta G) \Psi) \\ &= \langle \Delta F^2 \rangle_{\Psi} - \langle J^2 \Delta G^2 \rangle_{\Psi} \xi^2 + \langle J [F, G] \rangle_{\Psi} \xi \\ &= f(\xi) \geq f_{\min} (\xi') \geq 0. \end{aligned} \quad (2.9)^*$$

\*) We have written  $J$  for  $J_{(FG)}$ .

In order to make appear  $\langle \Delta G^2 \rangle_{\Psi}$  in (2.9), it is necessary that  $J_{(FG)}^2$  is a number  $\neq 0$ . Being antisymmetric, this number must be negative. As  $\xi$  is an arbitrary number, we lose no generality in normalising  $J_{(FG)}^2 = -1$ . Thus, we arrive at the conditions (0.5) and (0.6).

The minimum  $f_{\min}(\xi')$  of  $f(\xi)$  is easily found to be at

$$\xi' = -1/2 \langle J_{(FG)} [F, G] \rangle_{\Psi} \langle \Delta G^2 \rangle_{\Psi}^{-1} \quad (2.10)$$

which we insert in the last inequality (2.9). Multiplying with  $\langle \Delta G^2 \rangle_{\Psi}$ , we find the inequality (0.8) with  $\lambda^2 = 1/4$ . Assuming but one universal  $J$  (see text following (0.8)), we arrive at the UP:

$$\langle \Delta F^2 \rangle_{\Psi} \langle \Delta G^2 \rangle_{\Psi} \geq \frac{1}{4} \langle J[F, G] \rangle_{\Psi}^2. \quad (2.11)$$

### § 3. The linear inhomogeneous group $\{L\}$ in $x$ -space

$\{L\}$  is defined by its general element  $L$  (0.14) and the condition (0.15), stipulating the invariance of the metric tensor  $g^{\alpha\beta}$ . A classical observable transforms according to (0.16) or (0.17). It will be useful to combine the indices'

$$\{\alpha \beta \dots x y \dots\} \equiv X \quad (3.1)$$

and define

$$\left. \begin{aligned} 'F^X &\equiv 'F'^{\alpha}{}_{\beta} \dots ('x' y \dots) = L'^X{}_X F^X \\ &= L'^{\alpha}{}_{\alpha} L'^{\beta}{}_{\beta} \dots \int d^n x \delta('x - Lx) \int d^n y \delta('y - Ly) \dots F^{\alpha\beta} \dots (xy \dots) \\ &= L'^{\alpha}{}_{\alpha} L'^{\beta}{}_{\beta} \dots F^{\alpha\beta} \dots (L^{-1} 'x L^{-1} 'y \dots). \end{aligned} \right\} \quad (3.2)$$

Let us now consider how the expectation value

$$\langle F^{\alpha} \dots (x \dots) \rangle_{\Psi} = (\Psi, F^{\alpha} \dots (x \dots) \Psi) = \Psi_a F^X_{ab} \Psi_b \quad (3.3)$$

transforms under  $\{L\}$ . There are *two possibilities*: Either we leave  $\Psi_a$  *unchanged* and write

$$\langle 'F'^{\alpha} \dots ('x \dots) \rangle_{\Psi} = L'^{\alpha}{}_{\alpha} \dots (\Psi, F^{\alpha} \dots (L^{-1} 'x \dots) \Psi) \quad (3.4)$$

which expresses the fact that  $'F'^X$  is the *transformed operator* (3.2) (0.16) (0.17). Or, we may express the transformed expectation value in terms of the initial operator  $F^X$  with the index  $'X = ('^{\alpha} \dots 'x \dots)$  and in terms of a *transformed vector*  $'\Psi_a$

$$' \Psi_a = O_{aa} \Psi_a = \Psi_a O_a^T{}'_a \quad (3.5)$$

in the form

$$\langle F'^{\alpha} \dots ('x \dots) \rangle_{\Psi} = \langle F'^{\alpha} \dots ('x \dots) \rangle_{\Psi} = {}'\Psi_a F'^{\alpha}_{a'b} {}'\Psi_b. \quad (3.6)$$

Equating (3.4) and (3.6) we obtain an *identity*

$$\Psi_a L'^{\alpha}_{\alpha} \dots F'^{\alpha}_{ab} (L^{-1} 'x \dots) \Psi_b \equiv \Psi_a O^T_{a'a} F'^{\alpha}_{a'b} ('x \dots) O_{b'b} \Psi_b \quad (3.7)$$

between two *quadratic forms* in  $\Psi_a$ . Or, these forms are equal, for an arbitrary  $\Psi$ , if and only if\*)

$$L'^{\alpha}_{\alpha} \dots F'^{\alpha}_{ab} (L^{-1} 'x \dots) = O^T_{a'a} F'^{\alpha}_{a'b} ('x \dots) O_{b'b}. \quad (3.8)$$

We may write this identity (multiplying by  $O \dots O^{-1}$ )

$$F'^X_{a'b} = L'^X_X O_{a'a} F^X_{ab} O^T_{b'b} \quad (3.9)$$

Thus  $F^X_{ab}$  considered as a 'vector' in  $X = \{\alpha \dots x \dots\}$ -space and as a symmetrix tensor in  $a$ -space, is left invariant, if it is transformed with respect to its three indices  $X$  and  $a, b$ . This is in perfect analogy to metric tensor  $g^{\alpha\beta}$  in (0.15) and to the  $\alpha$ -vector mixed bispinor  $\gamma^A_B$  (cf.<sup>1)</sup> and an article, to appear in this journal, on Spinor Calculus in RHS).

Now it is easily seen, that the  $\{O\}$  group is a *ray representation* of the  $\{L\}$ -group: Write  $L_{(1)}$  and  $O^{(1)}$  in (3.9) and consider a second transformation  $L_{(2)}$  and  $O^{(2)}$  leading from the frames  $'X'a$  to the frames  $''X''a$ :

$$F'^X_{a''b} = L'^X_{(2)'X} O^{(2)'}_{a'a} O^{(2)'}_{b'b} F'^X_{a'b} \quad (3.10)$$

and substitute (3.9) in (3.10): From

$$F'^X_{a''b} = (L_{(2)} L_{(1)})'^X_X (O^{(2)} O^{(1)})'_{a'a} (O^{(2)} O^{(1)})'_{b'b} F^X_{ab} \quad (3.11)$$

it is seen that  $L \rightarrow O$  and  $L \rightarrow (-O)$  is a two valued representation. However, since  $J$  commutes with any observable  $F, G$ , we may write

$$L \rightarrow e^{\lambda J} O, \quad L^{-1} \rightarrow O^{-1} e^{-\lambda J} \quad (3.12)$$

where the number  $\lambda$  is an arbitrary phase. We see, that  $O$  does not necessarily commute with  $J$ .

To illustrate the identity

$$\langle F'^X \rangle_{\Psi} = \langle F'^X \rangle_{\Psi}$$

we have drawn the Fig. 1 and 2:

\*) In CHS, where  $\langle \hat{\Psi}, \hat{A} \hat{\Psi} \rangle$  is a *complex number* (cf. Annex (A-2)) the unitary transformation  $U^\dagger = U^{-1}$  replaces  $O^T = O^{-1}$ . Thus we have two real identities, and the condition

$$L'^{\alpha}_{\alpha} \hat{A}^{\alpha}_{p'q} (L^{-1} 'x) = U_{p'p}^{-1} \hat{A}^{\alpha}_{p'q} ('x) U_{q'q} \quad (3.8 \hat{A})$$

is valable for *all operators*  $\hat{A}$ , whether hermitian or not.

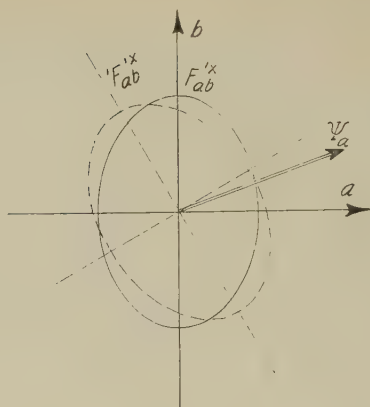


Fig. 1  
*a*-frame

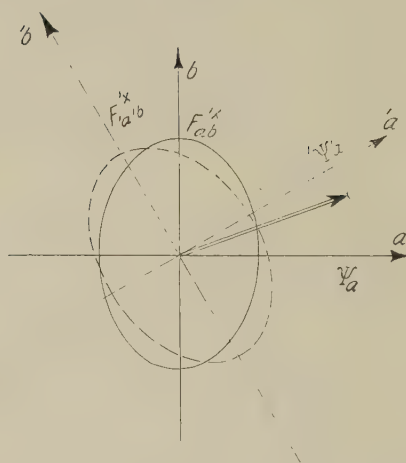


Fig. 2  
*a*-frame and '*a*'-frame

Either (Fig. 1), we form  $\Psi_a F_{ab}^{X'} \Psi_b$  in the *a*-frame from the ( $'X \leftarrow X$ )-transformed tensor

$$'F_{ab}^{X'} = L_{X'}^X F_{ab}^X$$

(which has, on account to the  $\{L\}$ -invariance, the same length of the principal axes as the untransformed tensor  $F_{ab}^X$ ) with respect to  $\Psi_a$ .

Or (Fig. 2), we form  $'\Psi_a F_{a'b}^{X'} \Psi_b$  in the '*a*'-frame from the tensor  $F_{a'b}^{X'}$  (which has, in the '*a*'-frame, the same components as  $F_{ab}^{X'}$  has in the *a*-frame) with respect to  $'\Psi_a$ .



From the two figures follwes immediately:

$${}^{\circ}\Psi_{,a} = O_{,a a} {}^{\circ}\Psi_a; \quad F_{,a'b}^X = O_{,a a} O_{,b b} {}^{\circ}F_{ab}^X \quad (3.13)$$

or

$${}^{\circ}F_{ab}^X = L_{,X}^X F_{ab}^X = O_{,a'a}^{-1} F_{,a'b}^X O_{,b b}; \quad (3.14)$$

$${}^{\circ}F^{\alpha\cdots}({}^{\circ}x\cdots) = L_{,\alpha\cdots}^{\alpha\cdots} F^{\alpha\cdots}(L^{-1}{}^{\circ}x\cdots) = O^{-1} F^{\alpha\cdots}({}^{\circ}x\cdots) O$$

#### § 4. The Thermodynamic Signature of $g^{\alpha\beta}$ and the Pseudo-Chronous Character of $J = \check{J}$

We need the hypotheses that a *particular state*  $\Psi^{(0)}$  of the cosmos exists, the vacuum, which is *homogeneous and isotropic*. Let us consider, for the simplicity, a *local scalar observable*  $F(x)$ , and write the UP for two events  $x$  and  $y$  in the form

$$\langle J[F(x), F(y)] \rangle_{\Psi^{(0)}} \equiv \check{f}(x y) = -\check{f}(y x). \quad (4.1)$$

Homogeneity requires:

$$\check{f}(x y) = \check{f}(x - y). \quad (4.2)$$

Isotropy would further require:

$$\check{f}(x y) = \check{f}((x - y)^2), \quad (4.3)$$

$$(x - y)^2 = (x - y)_{\alpha} (x - y)^{\alpha}. \quad (4.4)$$

However, (4.3) is in contradiction with the antisymmetry (4.1) of the commutator. There is only one way to turn this difficulty: We have to give to the differentiable manifold  $\{x^2\}$  *one privileged axis*,  $x^n = t$ , the time. By this we understand that the metric has the *thermodynamic signature*:

$$\text{signat}(g^{\alpha\beta}) = \pm (1 \ 1 \ \dots \ 1 - 1). \quad (4.5)$$

We have shown in an earlier paper<sup>4)</sup>, that this signature is necessary for a phenomenological relativistic thermodynamics. Thus we may define a function

$$\left. \begin{aligned} \check{f}(x y) &= \text{sig}(x^n - y^n) f((x - x)^2) \\ f((x - y)^2) &= 0 \quad \text{for } x - y = \text{spatial} \end{aligned} \right\} \quad (4.6)$$

which is homogeneous and 'quasi-isotropic'. Now it is easily seen, that  $\check{f}$  is a pseudo-chronous bilocal scalar

$${}^{\circ}\check{f}({}^{\circ}x {}^{\circ}y) = \text{sig}(L_{,n}^n) \check{f}(L^{-1}{}^{\circ}x L^{-1}{}^{\circ}y) \quad (4.7)$$

because, for  $L_{,n}^n > 0$ , we have

$${}^{\circ}\check{f}({}^{\circ}x {}^{\circ}y) = \check{f}(L^{-1}{}^{\circ}x L^{-1}{}^{\circ}y) = \check{f}(x y); \quad L_{,n}^n > 0 \quad (4.8)$$

while, for  $L'^n_n < 0$ , the relation ( $x = L^{-1} x$ ) is

$$\left. \begin{aligned} \check{f}'(x'y) &= -\text{sig}(x^n - y^n) \check{f}((x - y)^2) \\ &= -\check{f}(x'y); \quad L'^n_n < 0. \end{aligned} \right\} \quad (4.9)$$

Thus we may write, using the homogeneity and the pseudo-chronous isotropy of  $\check{f}$ :

$$\check{f}'(x'y) = \text{sig}(L'^n_n) \check{f}(x'y). \quad (4.10)$$

Now, consider the transformed value of the observable  $J[F(x), F(y)]$ , which is, according to (3.5) and (3.6), the expectation value with respect to  $\Psi^{(0)}$  of

$$\left. \begin{aligned} O^{-1} (J [F'(x), F'(y)]) O \\ = O^{-1} J O [F'(x), F'(y)] \end{aligned} \right\} \quad (4.11)$$

$$\text{in} \quad \langle O^{-1} J O [F'(x), F'(y)] \rangle_{\Psi^{(0)}} = \check{f}'(x'y) \quad (4.12)$$

or  $F'(x) = F(L^{-1}x) = F(x)$ , according to (0.16). Thus, making use of the relation (4.10), we obtain

$$\langle (O^{-1} J O) [F(x), F(y)] \rangle_{\Psi^{(0)}} = \text{sig}(L'^n_n) \check{f}(x'y). \quad (4.13)$$

Comparing this relation to (4.1), we find (0.13):

$$J \equiv \check{J}; \quad O^{-1} \check{J} O = \text{sig}(L'^n_n) \check{J} \equiv \check{J}. \quad (4.14)$$

(4.14) defines the transformed operator  $\check{J}$ :

The transformation law  $\check{J} \rightarrow \check{J}$  is now analogous to the law (0.17) for an  $x$ -independent operator. Note however, that  $\check{J}$  is but a *definition*, because we have established the identities expressed in the second equation (0.16) (and (0.17)) by comparing (3.4) and (3.6) in (3.7) only for observables, i. e. for symmetric  $a$ -space tensors  $F, G, \dots$  and not for antisymmetric  $a$ -space tensors like  $\check{J}$ .

## § 5. Infinitesimal Lorentz transformations

After having introduced the pseudo-euclidian signature with one privileged axis  $x^n = t$  in § 4, our group  $\{L\}$  is the *full Lorentz-group in  $n$  dimensions*. Writing down the infinitesimal transformation  $L = L(\delta\lambda \cdot \delta\omega^{(\cdot\cdot)})$  ((0.18) (0.19)) we find

$$\left. \begin{aligned} L'^\alpha_\alpha F^\alpha(L^{-1}x) &= (\delta'^\alpha_\alpha + \frac{1}{2} \delta\omega^{\mu\nu} \Sigma_{\mu\nu}{}^\alpha_\alpha) F^\alpha(x) - \delta\lambda^\cdot - \delta\omega^\cdot{}_\nu x^\nu \\ &= F'^\alpha(x) + \delta\lambda^\mu (-\partial_\mu) F'^\alpha(x) + \frac{1}{2} \delta\omega^{\mu\nu} N_{\mu\nu}{}^\alpha_\alpha F^\alpha(x) \end{aligned} \right\} \quad (5.1)$$

where  $-\partial_\mu$  and

$$'N_{\mu\nu}{}^{\prime\alpha}{}_\alpha = [x_\mu, \partial_\nu] \delta'^\alpha{}_\alpha + \Sigma_{\mu\nu}{}^{\prime\alpha}{}_\alpha \quad (5.2)$$

are the generators of the  $n + (1/2)n(n-1)$ -parameter Lie-group  $\{L_{(\text{cont})} = L(\lambda, \omega^{[\cdots]})\}$ , which is the continuous subgroup of  $\{L\}$ . The generators satisfy the Lie structure relations:

$$[-\partial_\mu, -\partial_\nu] = 0 \quad (5.3)$$

$$[N_{\mu\nu}, N_{\sigma\tau}] = -g_{\mu\sigma} N_{\nu\tau} - g_{\nu\tau} N_{\mu\sigma} + g_{\mu\tau} N_{\nu\sigma} + N_{\nu\sigma} g_{\mu\tau} \quad (5.4)$$

$$[-\partial_\mu, N_{\sigma\tau}] = g_{\mu\sigma} (-\partial_\tau) - g_{\mu\tau} (-\partial_\sigma). \quad (5.5)$$

Now the corresponding orthogonal operator  $O(\delta\lambda, \delta\omega^{[\cdots]})$  can be written as

$$O(\delta\lambda, \delta\omega^{[\cdots]}) = 1 + \delta\lambda^\mu (-\check{J} \check{\Pi}_\mu) + \frac{1}{2} \delta\omega^{\mu\nu} (\check{J} \check{M}_{\mu\nu}). \quad (5.6)$$

The symmetric operators  $\check{\Pi}_\mu$  and  $\check{M}_{[\mu\nu]}$  are pseudo-chronous observables and commute with  $\check{J}$ , because  $O_{(\text{cont})} \rightarrow L_{(\text{cont})}$ , contains neither time- nor space-reflections. In particular, the generators of the group  $\{O_{(\text{cont})}\}$ :  $-\check{J} \check{\Pi}_\mu$  and  $\check{J} \check{M}_{\mu\nu}$  must satisfy the Lie structure relations (5.3)–(5.5) of  $L_{(\text{cont})}$ .

Multiplying by  $\check{J}^{-1}$ , these are (0.22)–(0.24).

The identity (3.9), which relates  $L$  and  $O$  is, for the infinitesimal element

$$\left. \begin{aligned} F'^\alpha(x) &= F'^\alpha(x) + \delta\lambda^\mu (-\partial_\mu F'^\alpha(x) - \check{J}[\check{\Pi}_\mu, F'^\alpha(x)]) \\ &+ \frac{1}{2} \delta\omega^{\mu\nu} (N_{\mu\nu}{}^{\prime\alpha}{}_\alpha F'^\alpha(x) + \check{J}[\check{M}_{\mu\nu}, F'^\alpha(x)]) \end{aligned} \right\} \quad (5.10)$$

and leads thus to (0.20) and (0.21).

The sign of  $\check{\Pi}_\mu$  is chosen in order to give, for signat  $(g^{\alpha\beta}) = (1 \ 1 \dots 1 \ -1)$ , the relation  $(\partial_n = \partial_t, \check{\Pi}^n = -\check{\Pi}_n \equiv \check{H})$

$$\partial_t F(\vec{x}, t) = \check{J}[\check{H}, F(\vec{x}, t)], \quad (5.11)$$

where the Heisenberg operator  $F(\vec{x}, t)$  and the Schrodinger operator  $\bar{F}(\vec{x})$  are related by

$$\langle F(\vec{x}, t) \rangle_\Psi = \langle \bar{F}(\vec{x}) \rangle_{\bar{\Psi}(t)}; \quad \bar{\Psi}(t) = e^{-\check{J}\check{H}t} \Psi \quad (5.12)$$

or

$$F(x) = \bar{F}(\vec{x}, t) = e^{\check{J}\check{H}t} \bar{F}(\vec{x}) e^{-\check{J}\check{H}t}. \quad (5.13)$$

We write  $\check{H}$  with the pseudo-chronous sign  $\check{\phantom{H}}$ , because it is the  $n$ -th component of  $\check{\Pi}^\alpha$ . For time reflection,  $(x^i = x^i, x^n = -x^n)$  we have therefore:

$$' \check{H} = \check{H}, \quad ' \check{\Pi} = -\check{\Pi}. \quad (5.14)$$

The energy operator  $\check{H} = \check{H}^n$  does not change its sign, while the momentum operator  $\check{H}$  changes sign, because velocities change sign.

In order to show that  $\check{M}^{ik}$  is the angular momentum operator, we consider the transformation for an infinitesimal displacement of the origine:

$$'x'^{\mu} = x'^{\mu} + \delta\lambda'^{\mu} \quad (5.15)$$

$$'M'^{\mu\nu} = O^{-1} \check{M}'^{\mu\nu} O = \check{M}'^{\mu\nu} + \delta\lambda^{\sigma} J[\check{H}_{\sigma}, \check{M}'^{\mu\nu}] \quad (5.16)$$

or, using (0.24)

$$\check{M}'^{\mu\nu} = \check{M}'^{\mu\nu} + (\delta\lambda'^{\mu} \check{H}'^{\nu} - \delta\lambda'^{\nu} \check{H}'^{\mu}). \quad (5.17)$$

This shows that the arm-length of the moment with respect to the primed frame ( $\alpha$ -frame) is larger by the amount  $\delta\lambda'^{\mu}$  than the arm-length with respect to the  $\alpha$ -frame.

### § 6. The momentum-energy density operator

$\check{H}^{\mu}$  and  $\check{M}^{(\mu\nu)}$  can be expressed as integrals over an arbitrary time-like surface  $'\tau(x) = 0$ , whose covariant  $n$ -component  $\check{d}\sigma_n(x)$  of the surface-element  $d\sigma_{\alpha}(x)$  is positive in every  $\alpha$ -frame, if we choose the signature  $+(1 \ 1 \dots 1 \ -1)$ . This means that  $\check{d}\sigma_{\alpha}(x)$  is a *pseudo-chronous time-like vector* (0.26). Then it follows from Gauss' theorem, that the pseudo-chronous quantities  $\check{H}^{\mu}$  and  $\check{M}^{\mu\nu}$  are independent of the surface  $'\tau(x) = 0$  chosen, if (0.25) holds.

To verify the transformation law, let us transform (6.2) according to

$$'H^{\mu} = \int_{'\tau(x)=0} \check{d}\check{\sigma}_{\alpha}(x) O^{-1} \Theta^{\alpha\mu}(x) O = L^{\mu}_{\sigma} \int_{'\tau(x)=0} \check{d}\check{\sigma}_{\alpha}(x) L^{\alpha}_{\beta} \Theta^{\beta\sigma}(L^{-1}x) \quad (6.5)$$

and write  $y = L^{-1}x$ . Then, from the pseudo-chronous character of  $\check{d}\check{\sigma}_{\alpha}$  follows

$$\check{d}\check{\sigma}_{\alpha}(Ly) L^{\alpha}_{\beta} = \text{sig}(L^n_n) \check{d}\check{\sigma}_{\beta}(y) \quad (6.6)$$

where  $\check{d}\check{\sigma}_n(Ly)$  is orientated parallel to  $x^n = (Ly)^n$ , while  $\check{d}\check{\sigma}_n(y)$  is orientated parallel to  $y^n = (L^{-1}x)^n$ .

Thus we have finally, writing  $'\mu$  for  $\mu$  and  $\mu$  for  $\sigma$

$$'H'^{\mu} = \text{sig}(L^n_n) L'^{\mu}_{\mu} \int_{'\tau(Ly)=\tau(y)=0} \check{d}\check{\sigma}_{\beta}(y) \Theta^{\beta\mu}(y). \quad (6.7)$$

The integral being independent of the particular surface  $\tau(x) = 0$  or  $'\tau(x) = 0$  chosen, we may write:

$$'H'^{\mu} = \text{sig}(L^n_n) L'^{\mu}_{\mu} \check{H}^{\mu}. \quad (6.8)$$

Analogously, we transform

$$\overset{\circ}{M}{}^{\mu\nu} = O^{-1} \overset{\circ}{M}{}^{\mu\nu} O = \int_{\tau(x)=0} d\overset{\circ}{\sigma}_\alpha(x) L^\alpha_\beta(x^\mu L^\nu_\tau \Theta^{\beta\tau}(L^{-1}x) - x^\nu L^\mu_\sigma \Theta^{\beta\sigma}(L^{-1}x)) \quad (6.9)$$

and substitute  $x = Ly$ :  $x^\mu = L^\mu_\sigma (y^\sigma + L^\sigma)$ . Using again (6.6), we obtain

$$\left. \begin{aligned} \overset{\circ}{M}{}^{\mu\nu} &= \text{sig}(L'^n_n) L'^\mu_\mu L'^\nu_\nu \int_{\tau(y)=0} d\overset{\circ}{\sigma}_\beta(y) ((y^\mu + L^\mu) \Theta^{\beta\nu}(y) \\ &- (y^\nu + L^\nu) \Theta^{\beta\mu}(y)) = \text{sig}(L'^n_n) L'^\mu_\mu L'^\nu_\nu (\overset{\circ}{M}{}^{\mu\nu} + L^\mu \overset{\circ}{\Pi}{}^\nu - L^\nu \overset{\circ}{\Pi}{}^\mu) \end{aligned} \right\} \quad (6.10)$$

Thus we have verified the pseudo-chronous character of momentum-energy  $\overset{\circ}{\Pi}{}^\mu$  and of angular momentum-centre of energy  $\overset{\circ}{M}{}^{[\mu\nu]}$ , expressed as surface integrals of an ortho-chronous momentum-energy density  $\Theta^{(\alpha\beta)}(x)$  over a surface  $\tau(x) = 0$ , with a pseudo-chronous time-like surface element  $d\overset{\circ}{\sigma}_\alpha(x)$ .

## § 7. Physical Meaning of the Passive Time Reversal

To our *passive interpretation* of time reversal, it has been objected, that only the *active interpretation* has a physical sense, because an observation at an epoch  $t'$  changes the earlier state (in the thermodynamic sense) of the system  $\Psi$  into a later state  $\Psi'$  corresponding to the measure of an observable  $F = F^{(i)}$ . However, we may consider an observer which makes only correlation experiments:

This observer makes a great number, say  $N$ , of experiments, at two epochs  $t'_{(1)}$  and  $t'_{(1)}$ ,  $t'_{(2)}$  and  $t'_{(2)}$  etc. ..., separated always by  $\Delta t$ . Let us suppose first that  $t$  measures the thermodynamic time order, and that

$$t'' - t' = t'_{(1)} - t'_{(1)} = t'_{(2)} - t'_{(2)} = \dots = t'_{(N)} - t'_{(N)} = \Delta t > 0 \quad (7.1)$$

Every time, an observer observes  $F^{(i)}$  at the earlier epoch  $t'$ , he will observe  $G = \{G^{(k)}\}$  at the later epoch and thus be able to make a statistics

$$F^{(i)} \rightarrow G^{(1)}, G^{(2)}, \dots, G^{(k)}, \dots G^{(wG)} \quad (7.2)$$

giving transition probabilities

$$W(\overrightarrow{k}, i') \geq 0; \quad \sum_k W(\overrightarrow{k}, i') = 1. \quad (7.3)$$

However, he is free to evaluate his statistics the other way round: Every time he registers  $G^{(k'')}$  at the later epoch  $t''$ , he makes statistics of the corresponding measures of  $F = F^{(i)}$  at the earlier epoch  $t'$ . Thus, he obtains transition probabilities

$$W(\overrightarrow{k''}, i) \geq 0, \quad \sum_i W(\overrightarrow{k''}, i) = 1. \quad (7.4)$$



The coefficients (7.3) and (7.4) are of course equal

$$W(\overleftarrow{k}, \overrightarrow{i}) = W(\overleftarrow{k}, \overleftarrow{i}) = W(\overleftarrow{k}, \overleftarrow{i}). \quad (7.4b)$$

The arrows  $\leftarrow$  (evolution in the thermodynamic sense) and  $\rightarrow$  (evolution in the opposite sense) are thus superfluous. This means, that quantum-mechanical 'predictions' can be made for the future as well as for the past. If the system is not degenerate, we may write  $F^{(a)}$  and  $G^{(a)}$  for  $F^{(i)}$  and  $G^{(k)}$  (see (1.5)) and our correlation coefficients are

$$W(a, a) = (O_a)^2 = (O_a^T)^2. \quad (7.5)$$

They correspond to the doubly normalised transition amplitudes:

$$W(k, i) \geq 0; \quad \sum_k W(k, i) = 1; \quad \sum_i W(k, i) = 1 \quad (7.6)$$

used by INAGAKI, PIRON and WANDERS<sup>9</sup>) to prove the Boltzmann  $H$  theorem for the most general case (STUECKELBERG<sup>8</sup>)), while the usual proof assumes, instead of (7.6), detailed balancing

$$W(k, i) = W(i, k) \quad (7.7)$$

which is known to be insufficient<sup>8)9</sup>).

*Therefore, passive time reversal can be verified experimentally.*

## § 8. Acknowledgments

The author is very much indebted to the Theoretical Study Division of CERN, in particular to J. M. JAUCH. He also wishes to thank his assistants C. PIRON (Lausanne) and H. RUEGG (Genève) for many helpful suggestions.

### Annex 1. Remark on Generalised Poisson Brackets

In order to establish the *Boltzmann  $H$ -theorem* in classical statistical mechanics, we have to start from a covariant theory of motion in *phase space*  $x = \{x^\alpha\}$  ( $\alpha \beta \dots = 1 \ 2 \dots \omega$ ), which satisfies the *theorem of Liouville*. The *conservation of energy*  $H = H(x)$  leads to an equation of motion for  $x^\alpha = z^\alpha(t)$

$$\dot{z}^\alpha(t) = \partial_i z^\alpha(t) = (\partial_\beta H(z(t)) j^{\beta\alpha}(z(t)), \quad (A-1.1)$$

where

$$j^{\alpha\beta}(x) = j^{[\alpha\beta]}(x) \quad (A-2.2)$$

is an *antisymmetrical tensor in phase space*. The *scalar density* of the Gibbs ensemble is  $w(x, t) \geq 0$ . It satisfies the equation of continuity

$$\int d^\omega x \ w(x, t) = 1; \quad \partial_t w(z, t) + \partial_\alpha (\dot{z}^\alpha w(z, t)) = 0 \quad (A-2.2)$$

and transforms according to

$$w'(x, t) = |\det(A'^{\mu}_{\mu}(x))| w(x, t) \geq 0. \quad (\text{A-2.3})$$

$$x'^{\alpha} = \psi'^{\alpha}(x); \quad A'^{\alpha}_{\alpha}(x) = \partial_{\alpha} \psi'^{\alpha}(x)$$

Let  $d\Omega(x) = g(x) |d\varphi^{[12 \dots \omega]}| = g \underset{(\beta)}{d^{\omega}x}$  be the invariant scalar volume element, where  $d\varphi^{[\alpha_1 \alpha_2 \dots \alpha_{\omega}]} = \det \underset{(\beta)}{(dx^{\alpha})}$  is the antisymmetric tensor of the parallelepiped, formed from  $\omega$  non coplanar vectors  $d \underset{(\beta)}{x^{\alpha}}$ . Then we may introduce the *scalar of the density*  $w(x, t)$

$$w(x, t) = \frac{dW(x, t)}{d\Omega(x)} = \frac{w}{g}(x, t) > 0 \quad (\text{A-2.4})$$

where  $g(x)$  is the 'density of volume'. To form such a density we have only the antisymmetric contravariant tensor  $j^{[\mu\nu]}$  at our disposal, which is the *fundamental tensor in phase space*, analogous to the metric tensor  $g^{(\alpha\beta)}$  in Riemann space.

$$\text{Therefore we put} \quad g = |\det(j^{\mu\nu})^{-1/2}| > 0 \quad (\text{A-2.5})$$

because it has the right transformation property. It is  $\neq 0$  if, and only if,  $\omega = 2j$  is an *even number*. In terms of  $w(x, t)$ , the continuity equation (A-2.2) takes the form

$$\partial_t w + D_{\alpha}(z^{\alpha} w) = 0; \quad D_{\alpha} = \partial_{\alpha} + G_{\alpha}; \quad G_{\alpha} = \partial_{\alpha} \log g, \quad (\text{A-2.6})$$

where  $D_{\alpha}$  is the *covariant divergence operator*. The *theorem of Liouville* states, that the *scalar of the density*  $w$  remains constant, if we follow an orbit  $x^{\alpha} = z^{\alpha}(t)$ :

$$\frac{d}{dt} w(z(t), t) \equiv \dot{w}(z, t) = (\partial_t w + z^{\alpha} \partial_{\alpha} w)(z, t) = 0. \quad (\text{A-2.7})$$

This implies (see (A-2.6)):

$$D_{\alpha} z^{\alpha} = D_{\alpha}((\partial_{\beta} H) j^{\beta\alpha}) = (\partial_{\alpha} \partial_{\beta} H) j^{[\alpha\beta]} + (\partial_{\beta} H) D_{\alpha} j^{[\alpha\beta]} = 0 \quad (\text{A-2.8})$$

and is a covariant condition\*) for the fundamental tensor:

$$D_{\alpha} j^{[\alpha\beta]} = q^{\beta} = 0. \quad (\text{A-2.9.j}^*)$$

We may express it in terms of the density  $j^{\alpha\beta} = g j^{[\alpha\beta]}$

$$\partial_{\alpha} j^{[\alpha\beta]} = q^{\beta} = 0. \quad (\text{A-2.9.j}^*)$$

(A-2.9) is formally analogous to the *second set of Maxwell's equations*, if no electric charges  $q^{\beta}$  are present.

\*)  $D_{\alpha} F^{[\alpha\beta\gamma \dots]} = G^{[\beta\gamma \dots]}$  or  $\partial_{\alpha} \mathfrak{F}^{[\alpha\beta \dots]} = \mathfrak{G}^{[\beta\gamma \dots]}$  (A-2.9\*)

and  $\partial_{[\alpha} F_{\beta\gamma \dots]} = G_{[\alpha\beta\gamma \dots]}$  are covariant relations. (A-2.13\*)

An observable  $F(x)$  varies with time, according to

$$\dot{F}(z(t)) = \dot{z}^\alpha \partial_\alpha F = (\partial_\beta H) j^{[\beta\alpha]} \partial_\alpha F \equiv \{H, F\} = -\{F, H\} \quad (\text{A-2.10})$$

where  $\{H, F\}$  defines a *generalised Poisson bracket*.

It immediately follows, from

$$\begin{aligned} \{F, \{G, H\}\} &= (\partial_\alpha F) j^{[\alpha\beta]} \partial_\beta ((\partial_\gamma G) j^{[\gamma\delta]} \partial_\delta H) \\ &= (\partial_\alpha F) j^{[\alpha\beta]} (\partial_\beta \partial_\gamma G) j^{[\gamma\delta]} \partial_\delta H + (\partial_\alpha F) j^{[\alpha\beta]} (\partial_\gamma G) j^{[\gamma\delta]} \partial_\beta \partial_\delta H \\ &\quad + (\partial_\alpha F) (\partial_\beta G) (\partial_\gamma H) j^{[\alpha\delta]} \partial_\rho j^{[\beta\gamma]} \end{aligned}$$

that the cyclic sum is

$$\underset{FGH}{\hookrightarrow} \{F, \{G, H\}\} = (\partial_\alpha F) (\partial_\beta G) (\partial_\gamma H) \underset{\alpha\beta\gamma}{\hookrightarrow} j^{[\alpha\delta]} \partial_\rho j^{[\beta\gamma]}. \quad (\text{A-2.11})$$

Thus, the Jakobi identity is not necessarily satisfied.

If we require this identity, we must have

$$\underset{\alpha\beta\gamma}{\hookrightarrow} j^{\alpha\delta} \partial_\rho j^{\beta\gamma} \equiv q^{[\alpha\beta\gamma]} = 0, \quad (\text{A-2.12})$$

to which we may give the form of the *first set of Maxwell's equations* in the absence of magnetic charge  $q_{[\alpha\beta\gamma]}$

$$\underset{\alpha\beta\gamma}{\hookrightarrow} \partial_\alpha j_{[\beta\gamma]} \equiv q_{[\alpha\beta\gamma]} = 0. \quad (\text{A-2.13})*$$

if we introduce the inverse tensor  $j_{\alpha\beta}$ :

$$j_{\alpha\rho} j^{\beta\sigma} = \delta_{\alpha}^{\beta}; \quad j_{\alpha\beta} = \min(j^{\alpha\beta}) / \det(j^{\mu\nu}). \quad (\text{A-2.14})$$

From this definition follows

$$j_{\alpha\rho} j_{\beta\sigma} j^{\sigma\sigma} = j_{\alpha\rho} \delta_{\beta}^{\sigma} = j_{\alpha\beta}. \quad (\text{A-2.15})$$

We may thus raise and lower indices, with these antisymmetric fundamental tensors  $j^{[\alpha\beta]}$  and  $j_{[\alpha\beta]}$

$$F_{\alpha\beta} \dots = j_{\alpha\alpha'} j_{\beta\beta'} \dots F^{\alpha'\beta'} \dots \quad F^{\alpha\beta} = j^{\alpha\alpha'} j^{\beta\beta'} \dots F_{\alpha'\beta'} \dots \quad (\text{A-2.16})$$

In particular, it follows from

$$\partial_\rho \delta_{\gamma'}^\gamma = (\partial_\rho j^{\beta\gamma}) j_{\beta\gamma'} + j^{\beta\gamma} \partial_\rho j_{\beta\gamma'} = 0$$

that

$$\partial_\rho j^{\beta\gamma} = j^{\beta\beta'} j^{\gamma\gamma'} \partial_\rho j_{\beta'\gamma'}. \quad (\text{A-2.17})$$

Introducing this expression into (A-2.12), we arrive at the first set of 'Maxwell's equations' (A-2.13), with the conditions that 'magnetic charges'  $q_{[\alpha\beta\gamma]}$  vanish.

This totally antisymmetric tensor of, magnetic charge'  $q^{[\alpha\beta\gamma]}$  in phase space with a fundamental tensor  $j^{[\alpha\beta]}$  plays an analogous role to the Riemann-Christoffel Tensor  $R_{([\alpha\beta][\gamma\delta])}$  in a space with a metric  $g_{(\alpha\beta)}$ : If  $q^{[\alpha\beta\gamma]}$  vanishes, a coordinate frame  $'x'^\alpha$  exists, where  $j^{[\alpha\beta]}$  has the form

$$\{j'^{\alpha'\beta'}\} = \left\{ \begin{array}{c|c|c} \begin{array}{cc} 0 & -1 \\ 1 & 0 \end{array} & \begin{array}{c} 0 \\ 0 \end{array} & \begin{array}{c} 0 \\ 0 \end{array} \\ \hline \begin{array}{c} 0 \\ 0 \end{array} & \begin{array}{cc} 0 & -1 \\ 1 & 0 \end{array} & \begin{array}{c} 0 \\ 0 \end{array} \\ \hline \begin{array}{c} 0 \\ 0 \end{array} & \begin{array}{c} 0 \\ 0 \end{array} & \begin{array}{c} \ddots \\ \ddots \end{array} \end{array} \right\}; \det (j'^{\alpha'\beta'}) = 1. \quad (\text{A-2.19})$$

This is analogous to the existence of an euclidian or pseudo-euclidian frame  $'g_{\alpha'\beta} = \pm \delta_{\alpha'\beta}$  in the flat space, if  $R_{([\alpha\beta][\gamma\delta])} = 0$ . The proof of this theorem is given for instance by WHITTAKER<sup>10)</sup> (see also PAULI<sup>12)</sup>):

It states, that the Pfaff differential expression formed from  $a_\alpha$  in

$$j_{\alpha\beta} = \partial_\alpha a_\beta - \partial_\beta a_\alpha \quad (\text{A-2.20})$$

consisting of  $\omega$  terms

$$a_\alpha(x) dx^\alpha = \sum_{i=1}^{i=f} p_i(x) dq_i(x) + \left\{ \begin{array}{l} 0; 2f \leq n \\ dq_{l+1}; 2f+1 \leq n \end{array} \right. \quad (\text{A-2.21})$$

can always be expressed in the form of the right-hand side.

Now put (as  $\omega = 2f$ )

$$p_i(x) = 'x^{2i-1}, q_i(x) = 'x^{2i}, i = 1 \ 2 \ \dots \ f. \quad (\text{A-2.22})$$

Then we have

$$'a_{2i}('x) = 'x^{2i-1}; \quad 'a_{2i-1}('x) = 0 \quad (\text{A-2.22})$$

and the only non zero component of  $'j'^{\alpha'\beta}$

$$' \partial_{2i-1} 'a_{2i}('x) = 'j_{2i-1, 2i} = +1, \quad 'j^{2i, 2i-1} = \min ('j_{2i, 2i-1}) = -1. \quad (\text{A-2.23})$$

Introducing

$$'H('x) = H(x) = 'H(p, q) \quad (\text{A-2.24})$$

we have

$$\left. \begin{aligned} 'z^{2i-1} = \dot{p}_i = ' \partial_{2i} 'H('z) 'j^{2i, 2i-1} = - ' \partial_{2i} 'H('z) = - \frac{\partial}{\partial q_i} 'H(p, q) \\ 'z^{2i} = \dot{q}_i = ' \partial_{2i-1} 'H('z) 'j^{2i-1, 2i} = ' \partial_{2i-1} 'H('z) = + \frac{\partial}{\partial p_i} 'H(p, q). \end{aligned} \right\} \quad (\text{A-2.25})$$

Therefore we see, that the Jakobi identity is *by no means necessary to establish the H-theorem*: Only the 'second Maxwell set' (absence of "electric charges"  $q^\alpha$ ) has to be satisfied. The presence of 'magnetic charges'  $q_{[\alpha\beta\gamma]}$  in the "first Maxwell set" does *not invalidate* Liouville's theorem (from which the Boltzmann H-theorem follows). To this generalised statistical mechanics corresponds aQT, in which the observables are no more linear operators, because of:

$$\overset{\curvearrowright}{FGH} J [F, J [G, H]] \neq 0. \quad (\text{A-2.26})$$

## Annex 2. Complex Hilbert Space (CHS)

If we restrict ourselves to the ortho-chronous subgroup  $\{L_{(\text{ochr})}\}$  with  $L_{(\text{ochr})n}'' > 0$ , all operators  $\{F, G, \dots, \check{J}, O_{(\text{ochr})}\}$  commute with  $J$ :

$$[\check{J}, O_{(\text{ochr})}] = [\check{J}, F] = \dots = 0; \quad \check{J}^T = -\check{J}; \quad \check{J}^2 = -1. \quad (\text{A-2.1})$$

We may now establish a relation (dictionary) between our QT in RHS and the conventional QT in CHS. To do this, we consider the  $\omega_R$ -dimensional RHS as a product space between a 2-dimensional RHS and an  $\omega_C = 1/2 \omega_R$ -dimensional RHS. We write

$$\Phi = (\Phi_{(r)} \Phi_{(i)}); \quad \Psi = \begin{pmatrix} \Psi_{(r)} \\ \Psi_{(i)} \end{pmatrix} \quad (\text{A-2.2})$$

and the arbitrary operator  $A$  ( $[\check{J}, A] = 0$ ) as the Kronecher product ( $\times$ )

$$A = 1 \times A_{(r)} + j \times A_{(i)}; \quad \check{J} = j \times 1 \quad (\text{A-2.3})$$

$$A_{(r)} = \{A_{(r) pq}\} \quad \text{and} \quad A_{(i)} = \{A_{(i) pq}\}$$

are  $\omega_C = 1/2 \omega_R$ -dimensional matrices ( $pq \dots = 1 \ 2 \dots \omega_C$ ) and

$$j = \begin{pmatrix} 0 & -\lambda \\ +\lambda & 0 \end{pmatrix}; \quad j^2 = -1; \quad \lambda^2 = 1. \quad (\text{A-2.4})$$

Now let us consider the  $\omega_C$ -dimensional complex Matrix ( $i = + \sqrt{-1}$ )

$$\hat{A} = A_{(r)} + i A_{(i)}; \quad \hat{A}^\dagger = A_{(r)}^T - i A_{(i)}^T \quad (\text{A-2.5}^*)$$

and the two  $\omega_C$ -dimensional complex vectors

$$\hat{\Phi} = \Phi_{(r)} + i \Phi_{(i)}; \quad \hat{\Psi} = \Psi_{(r)} + i \Psi_{(i)} \quad (\text{A-2.6})$$

where  $\Phi_{(r)}, \Phi_{(i)}, \Psi_{(r)}, \Psi_{(i)}, A_{(r)}$  and  $A_{(i)}$  are the real  $\omega_C$ -dimensional vectors and matrices. Now, we define the usual complex matrix element in CHS by

$$\left. \begin{aligned} \langle \hat{\Phi}, \hat{A} \hat{\Psi} \rangle &= ((\Phi_{(r)} - i \Phi_{(i)}), (A_{(r)} + i A_{(i)}) (\Psi_{(r)} + i \Psi_{(i)})) \\ &= ((\Phi_{(r)}, A_{(r)} \Psi_{(r)}) + (\Phi_{(i)}, A_{(r)} \Psi_{(i)}) - (\Phi_{(r)}, A_{(i)} \Psi_{(i)}) \\ &+ (\Phi_{(i)}, A_{(i)} \Psi_{(r)})) + i((\Phi_{(r)}, A_{(i)} \Psi_{(r)}) + (\Phi_{(i)}, A_{(i)} \Psi_{(i)}) + \\ &+ (\Phi_{(r)}, A_{(r)} \Psi_{(i)}) - (\Phi_{(i)}, A_{(r)} \Psi_{(i)})) = (\Phi_{(r)} \Phi_{(i)}) \\ &\left( \begin{pmatrix} A_{(r)} & -A_{(i)} \\ A_{(i)} & A_{(r)} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \Psi_{(r)} \\ \Psi_{(i)} \end{pmatrix} - i(\Phi_{(r)} \Phi_{(i)}) \begin{pmatrix} -A_{(i)} & -A_{(r)} \\ A_{(r)} & -A_{(i)} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \Psi_{(r)} \\ \Psi_{(i)} \end{pmatrix} \right) \\ &= \langle \hat{A} \hat{\Psi}, \hat{\Phi} \rangle^*. \end{aligned} \right\} \quad (\text{A-2.6}^*)$$

\*) An \* denotes the conjugate complex number. An  $\dagger$  signifies the Hermitian conjugate operator:

$$\hat{A}_{pq}^\dagger = \hat{A}_{qp}^*; \quad \hat{A}^\dagger = (\hat{A}^*)^T = (\hat{A}^T)^*. \quad (\text{A-2.9})$$



This expression is equal to

$$\langle \hat{\Psi}, \hat{A} \hat{\Phi} \rangle = (\Phi, A \Psi) - i(\Phi, \overset{\circ}{J} A \Psi) \quad (\text{A-2.7})$$

if we choose  $\lambda = +1$  in (A-2.3), i. e.

$$j = \begin{pmatrix} 0 & -1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \quad (\text{A-2.8})$$

(A-2.7) is the dictionary we proposed to establish.

It is worth noting, that the definition of  $j$  in (A-2.3) is univoque: (A-2.8).

### Annex 3. Unitary (U) and Anti-Unitary Operators (V) in CHS

We write our dictionary between CHS and RHS (A-2.7) in the form

$$\langle \hat{\Phi}, \hat{A}^\alpha(x) \hat{\Psi} \rangle = (\Phi, (1 - i \overset{\circ}{J}) A^\alpha(x) \Psi) \quad (\text{A-3.1})$$

where the left hand side is the scalar product in complex Hilbert space (= CHS) and the right hand side is the scalar product in RHS (i. e. all symbols, except  $i$ , stand for real quantities (vectors, operators)). Let us consider the transformed quantity (matrix element of  $A^\alpha(x)$  between the states  $\Phi \leftarrow \Psi$ )

$$\left. \begin{aligned} \langle \hat{\Phi}, {}' \hat{A}'^\alpha(x) \hat{\Psi} \rangle &= L'^\alpha_\alpha (\Phi, (1 - i \text{sig}(L'^n_n) \overset{\circ}{J}) A^\alpha(L^{-1}{}'x) \Psi) \\ \equiv \langle {}' \hat{\Phi}, \hat{A}'^\alpha(x) {}' \hat{\Psi} \rangle &= ({}' \Phi, (1 - i \overset{\circ}{J}) A'^\alpha(x) {}' \Psi) \end{aligned} \right\} \quad (\text{A-3.2})$$

#### a) Orthochronous transformations

( $L'^n_{(\text{ochr})n} > 0$ ): We have

$${}' \Psi_a = O_{aa} \Psi_a; \begin{pmatrix} {}' \Psi_{(r)} \\ {}' \Psi_{(i)} \end{pmatrix} = (1 \times O_{(r)} + j \times O_{(i)}) \begin{pmatrix} \Psi_{(r)} \\ \Psi_{(i)} \end{pmatrix} \quad (\text{A-3.4})$$

$${}' \hat{\Psi}_p = U_{pp} \hat{\Psi}_p; {}' \hat{\Psi} = (O_{(r)} + i O_{(i)}) \hat{\Psi} \equiv U \hat{\Psi} \quad (\text{A-3.5})$$

$${}' \hat{\Phi}^*_p = \hat{\Phi}^*_p U^{*T}_{pp} = \hat{\Phi}^*_p U^\dagger_{pp}; {}' \hat{\Phi}^* = (O_{(r)} - i O_{(i)}) \hat{\Phi}^* \equiv U^* \hat{\Phi}^* \equiv \hat{\Phi}^* U^\dagger \quad (\text{A-3.5*})$$

From the orthogonality of  $O$

$$\left. \begin{aligned} O^T O &= (1 \times O^T_{(r)} - j \times O^T_{(i)}) (1 \times O_{(r)} + j \times O_{(i)}) = \\ 1 \times (O^T_{(r)} O_{(r)} + O^T_{(i)} O_{(i)}) + j \times (O^T_{(r)} O_{(i)} - O^T_{(i)} O_{(r)}) &= 1 \times 1 = 1 \end{aligned} \right\} \quad (\text{A-3.6})$$

follows

$$O^T_{(r)} O_{(r)} + O^T_{(i)} O_{(i)} = 1; \quad O^T_{(r)} O_{(i)} - O^T_{(i)} O_{(r)} = 0. \quad (\text{A-3.8})$$

Thus, according to the definition of  $U$  and  $U^\dagger$  in (A-3.5), and (A-3.5\*),

$$U^\dagger U = 1 \quad (\text{A-3.9})$$

$U = \{U_{pq}\}$  is an *unitary matrix* in  $\omega_C^1 = 1/2 \omega_R$ -dimensional CHS ( $pq \dots = 1 \ 2 \dots \omega_C$ ;  $a \ b \dots = 1 \ 2 \dots \omega_R$ ). Because of  $\text{sig}(L'^n_n) = 1$  and of (A-3.1), we may write the second member of (A-3.2) in the form  $L'^\alpha_\alpha \langle \hat{\Phi}, \hat{A}^\alpha(L^{-1} 'x) \hat{\Psi} \rangle$ . Thus we obtain finally (see (A-2.5)) the identity

$$\hat{A}'^\alpha('x) = L'^\alpha_\alpha U \hat{A}^\alpha(L^{-1} 'x) U^\dagger \quad (\text{A-3.10})$$

i. e. the tensor  $\hat{A}_{pq}(x) = \hat{A}_{pq}^X$  is invariant if it is transformed with respect to all its indices:

$$\hat{A}'^X_{p'q} = L'^X_{(\text{ochr})X} U_{pp'} U_{qq'}^* \hat{A}^X_{pq} \quad (\text{A-3.11})$$

and  $U$  is an unitary representation of  $L_{(\text{ochr})}$

$$L_{(\text{ochr})} \rightarrow e^{i\lambda} U. \quad (\text{A-3.12})$$

### b) Pseudochronous Transformations ( $L'^n_{(\text{pchr})n} < 0$ )

We try (A-3.2), posing for the transformed matrix element (A-3.2)

$$\left. \begin{aligned} \langle \hat{\Phi}, \hat{A}'^\alpha('x) \hat{\Psi} \rangle &= \langle \hat{\Phi}, \hat{A}'^\alpha('x) ' \hat{\Psi} \rangle = \\ L'^\alpha_\alpha \langle \hat{\Phi}, (1 + i \check{J}) A^\alpha(L^{-1} 'x) \Psi \rangle &= L'^\alpha_\alpha \langle \hat{\Phi}, \hat{A}^\alpha(L^{-1} 'x) \hat{\Psi} \rangle^* \end{aligned} \right\} \quad (\text{A-3.13})$$

It is, in virtue of the definition (A-3.1), a *linear function of the untransformed conjugate complex element*. We shall see however, that the identity in  $\hat{A}'^\alpha_{p'q}('x)$  leads now to a contradiction. In order to show that, write, introducing a *non-linear operator*  $V$

$$' \hat{\Psi} = (V \hat{\Psi}), ' \hat{\Phi} = (V \hat{\Phi})$$

the second and fourth member of (A-3.13) in the Form:

$$\langle (V \hat{\Phi}), V(V^{-1} (\hat{A}'^\alpha('x) (V \hat{\Psi}))) \rangle = L'^\alpha_\alpha \langle \hat{A}^\alpha(L^{-1} 'x) \hat{\Psi}, \hat{\Phi} \rangle. \quad (\text{A-3.14})$$

Thus, we must have a relation

$$(V \hat{\Psi})_{p'} = U_{p'p} \hat{\Psi}^*_p; \quad (V^{-1} \hat{\Psi})_p = U_{p'p}^T \hat{\Psi}^*_{p'} \quad (\text{A-3.15})$$

$$(V \hat{\Phi})^*_{p'} = U^*_{p'p} \hat{\Phi}_p = \hat{\Phi}_p U^\dagger_{p'p}; \quad (V^{-1} \hat{\Phi})^*_p = U^\dagger_{p'p} \hat{\Phi}_{p'}. \quad (\text{A-3.15}^*)$$

where  $U$  is an unitary matrix, in order to have

$$\left. \begin{aligned} \langle V(\hat{\Phi}), V(\hat{\Psi}) \rangle &= \langle \hat{\Phi}, \hat{\Psi} \rangle^* = \langle \hat{\Psi}, \hat{\Phi} \rangle; \\ U^\dagger U &= U^T U^* = 1. \end{aligned} \right\} \quad (\text{A-3.16})$$

On account of (A-3.16), the identity (A-3.14) (second = forth member in (A-3.13)) has the form:

$$(V^{-1} (\hat{A}'^\alpha('x) (V \hat{\Psi})))^*_p \hat{\Phi}_p = (L'^\alpha_\alpha A^\alpha(L^{-1} 'x) \hat{\Psi})^*_p \hat{\Phi}_p, \quad (\text{A-3.17})$$

which must hold for all  $\hat{\Phi}_q$ . Thus we have

$$(V^{-1} (\hat{A}'^\alpha(x) (V\hat{\Psi})))_p = (L'^\alpha_\alpha \hat{A}^\alpha(L^{-1} x) \hat{\Psi})_p \quad (\text{A-3.18})$$

from this identity in  $\hat{\Psi}_p$  (see (A-3.15)) follows

$$U_{p'p}^T \hat{A}_{p'q}^* (x) U_{qq}^* = L'^\alpha_\alpha \hat{A}_{pq}^\alpha(L^{-1} x) \quad (\text{A-3.19})$$

$$\text{or} \quad A_{p'q}^{*\prime X} = L'^X_\alpha U_{pp}^* U_{qq} \hat{A}_{pq}^X. \quad (\text{A-3.20})$$

This identity can evidently not be satisfied in general, because no linear transformation  $(L'^\alpha_\alpha U^* \dots U^T)$  exists, which transforms *all* tensors  $\hat{A}_{pq}^X$  in hermitian CHS into their conjugate complex. Thus we conclude, that pseudo-chronous transformations are not given by (A-3.13), but we must have

$$\langle \hat{\Phi}, \hat{A}'^\alpha(x) \hat{\Psi} \rangle = \langle \hat{\Phi}, \hat{A}^{*\prime\alpha}(x) \hat{\Psi} \rangle = L'^\alpha_\alpha \langle \hat{\Phi}, \hat{A}^\alpha(L^{-1} x) \hat{\Psi} \rangle^*. \quad (\text{A-3.13}^*)$$

In this case,  $\hat{A}'^\alpha(x)$  (in the third member of (A-3.2) and in the first members of equations (A-3.14), (A-3.17)–(A-3.20)) has to be replaced by  $\hat{A}^{*\prime\alpha}(x)$ .

(A-3.20) is now analogous to (A-3.11)

$$\hat{A}_{p'q}^{*\prime X} = L'^X_{(\text{pchr})X} U_{pp}^* U_{qq} \hat{A}_{pq}^X. \quad (\text{A-3.20}^*)$$

This rather complicated formalism for time reversal in CHS shows clearly the advantage of RHS, where all transformations  $L \rightarrow e^{\lambda \check{J}} O$  are linear.

#### Annex 4. Quaternion Hilbert Space (QHS)

QHS has been introduced by FINKELSTEIN, JAUCH and SPEISER<sup>3</sup>). They pose, with  $i_\alpha^2 = -1$ ;  $i_1 i_2 = -i_2 i_1 = i_3$  cycl.:

$$\hat{\Phi} = \Phi_{(r)} + i_1 \Phi_{(1)} + i_2 \Phi_{(2)} + i_3 \Phi_{(3)} = \{\hat{\Phi}_p\} \quad (\text{A-4.1})$$

$$\hat{\Psi} = \Psi_{(r)} + i_1 \Psi_{(1)} + i_2 \Psi_{(2)} + i_3 \Psi_{(3)} = \{\hat{\Psi}_q\} \quad (\text{A-4.2})$$

$$\hat{A} = A_{(r)} + i_1 A_{(1)} + i_2 A_{(2)} + i_3 A_{(3)} = \{\hat{A}_{pq}\}. \quad (\text{A-4.3})$$

The QHS has  $\omega_Q = 1/4 \omega_R$ -dimensions:  $p, q, \dots = 1, 2, \dots, \omega_Q$ . The scalar product is defined by

$$\langle \hat{\Phi}, \hat{A} \hat{\Psi} \rangle = \hat{\Phi}_p^* \hat{A}_{pq} \hat{\Psi}_q \quad (\text{A-4.4})$$

where  $\hat{\Phi}_p^*$  is the conjugated quaternion of  $\hat{\Phi}_p$  ( $i_\alpha \rightarrow -i_\alpha$ ). All numbers,  $\hat{\Phi}_p$ ,  $\hat{A}_{pq}$ ,  $\hat{\Psi}_q$  and  $\langle \hat{\Phi}, \hat{A} \hat{\Psi} \rangle$  are now quaternions ( $\Phi_{(r)} \dots A_{(r)} \dots$  are real vectors and tensors). A straight forward calculation gives

$$\langle \hat{\Phi}, \hat{A} \hat{\Psi} \rangle_{(r)} = (\Phi, A \Psi) \quad (\text{A-4.5})$$

with

$$\Phi = (\Phi_{(r)} \Phi_{(1)} \Phi_{(2)} \Phi_{(3)}); \Psi = \begin{pmatrix} \Psi_{(r)} \\ \Psi_{(1)} \\ \Psi_{(2)} \\ \Psi_{(3)} \end{pmatrix} \quad (\text{A-4.6})$$

$$A = 1 \times A_{(r)} + j_1 \times A_{(1)} + j_2 \times A_{(2)} + j_3 \times A_{(3)}. \quad (\text{A-4.7})$$

The  $j_\alpha$ 's are four by four matrices and satisfy the same commutation laws as the quaternions  $i_\alpha$ 's ( $j^2 = -1$ ;  $j_1 j_2 = -j_2 j_1 = j_3$  cycl.). They are KRONECKER products of the 'pseudo-quaternions':

$$\left. \begin{aligned} 1 &= \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}, \quad j = \begin{pmatrix} 0 & -1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad k = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}, \quad l = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \\ -j^2 &= k^2 = l^2 = 1; \quad jk = -kj = l, \quad kl = -lk = -j \\ lj &= -jl = k \end{aligned} \right\} \quad (\text{A-4.8})$$

$$j_1 = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & j \end{pmatrix} = 1 \times j; \quad j_2 = \begin{pmatrix} 0 & -k \\ 1 & 0 \end{pmatrix} = j \times k; \quad j_3 = \begin{pmatrix} 0 & -l \\ 1 & 0 \end{pmatrix} = j \times l. \quad (\text{A-4.9})$$

However, in order to form the vector components of the quaternion, we need three further four by four matrices

$$\left. \begin{aligned} k_1 &= \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} = k \times 1; \quad k_2 = \begin{pmatrix} k & 0 \\ 0 & k \end{pmatrix} = 1 \times k; \quad k_3 = \begin{pmatrix} k & 0 \\ 0 & -k \end{pmatrix} = k \times k \\ k_1 k_2 &= k_2 k_1 = k_3 \text{ cycl.}; \quad k_\alpha^2 = 1 \\ [k_\alpha, j_\alpha] &= 0; \quad (k_\alpha, j_\beta) = 0; \quad \alpha \neq \beta \end{aligned} \right\} \quad (\text{A-4.10})*$$

in order to write

$$\langle \widehat{\Phi}, \widehat{A} \widehat{\Psi} \rangle_\alpha = -(\Phi, (k_\alpha j_\alpha \times 1) A \Psi). \quad (\text{A-4.11})$$

Introducing, analogous to (A-2.3)

$$J_\alpha = j_\alpha \times 1; \quad K_\alpha = k_\alpha \times 1, \quad (\text{A-4.12})$$

we find

$$\left. \begin{aligned} \langle \widehat{\Phi}, \widehat{A} \widehat{\Psi} \rangle &= (\Phi, A \Psi) - i_1 (\Phi, K_1 J_1 \Psi) - i_2 (\Phi, K_2 J_2 \Psi) \\ &\quad - i_3 (\Phi, K_3 J_3 \Psi). \end{aligned} \right\} \quad (\text{A-4.13})$$

Thus, QT in QHS is not equivalent to QT in RHS, because we need — in addition to the three anticommuting operators

$$J_\alpha^2 = -1; \quad J_1 J_2 = -J_2 J_1 = J_3 \text{ cycl.} \quad (\text{A-4.14})$$

— three further operators

$$\left. \begin{aligned} K_\alpha^2 &= 1; \quad K_1 K_2 = K_2 K_1 = K_3 \text{ cycl.} \\ [K_\alpha, J_\alpha] &= 0; \quad (K_\alpha, J_\beta) = 0, \quad \alpha \neq \beta. \end{aligned} \right\} \quad (\text{A-4.15})*$$

\*) We write  $[A, B] = AB - BA$  for the commutator and  $(A, B) = AB + BA$  for the anticommutator. This is in strict analogy to our notation for antisymmetric tensors  $j^{[\alpha\beta]} = -j^{[\beta\alpha]}$  and for symmetric tensors  $g^{(\alpha\beta)} = g^{(\beta\alpha)}$ .

### Annex 5. An Error in the Representation Theory Frequently Found in Literature

Instead of our identity, following from (3.4) and (3.5)

$$(\Psi, {}'F^{\alpha}({}'x) \Psi) = ({}'\Psi, \bar{F}^{\alpha}({}'x) {}'\Psi) \quad (\text{A-5.1})$$

many authors start from the identity

$$({}'\bar{\Psi}, {}'\bar{F}^{\alpha}({}'x) {}'\bar{\Psi}) = (\bar{\Psi}, \bar{F}^{\alpha}({}'x) \bar{\Psi}), \quad (\text{A-5.2})*$$

which is analogous to the relation (5.2) between the Schroedinger and the Heisenberg representation. We refer particularly to the otherwise excellent book by JAUCH and ROHRLICH<sup>11)</sup> (to be referred to as *JR*). They define

$${}'\bar{\Psi} = \bar{O} \bar{\Psi}, \quad \bar{O}^T = \bar{O}^{-1} \quad (\text{A-5.3})$$

and, as we have done,

$${}'\bar{F}^{\alpha}({}'x) = L'^{\alpha}_{\alpha} \bar{F}^{\alpha}(L^{-1} {}'x). \quad (\text{A-5.4})$$

From the identity in  ${}'\bar{\Psi}_a$  they find, of course

$${}'\bar{F}^{\alpha}({}'x) = \bar{O} \bar{F}^{\alpha}({}'x) \bar{O}^{-1}. \quad (\text{A-5.5})$$

Now, they pretend that  $\{e^{\frac{i}{\hbar}} \bar{O}\}$  is a ray representation of  $\{L\}$ . The identity which follows from (A-5.4) and (A-5.5) is, explicitly written:

$$L'^{\alpha}_{\alpha} \bar{F}^{\alpha}_{a'b}(L^{-1} {}'x) = \bar{O}_{a'a} \bar{F}^{\alpha}_{ab}({}'x) \bar{O}^{-1}_{b'b} \quad (\text{A-5.6})$$

(Eq. (1-43) and (1-42) p. 11 of *JR*). According to *JR*,  $\bar{O}$  (and not  $\bar{O}^{-1} = \bar{O}^T \equiv O$ , as we found in (3.8)) is a representation of  $L$ . They give no proof of their statement.

We shall give an argument, which may have lead them to this contradictory statement: Write  $L_{(1)}$  in (A-5.4) and  $\bar{O}^{(1)}$  in (A-5.5).  $L_{(1)}$  transforms from the  $X = \{x \alpha\}$ -frame to the  $'X$ -frame. Let  $L_{(1)}$  be followed by  $L_{(2)}$  transforming  $''X \leftarrow 'X$ :

$$''\bar{F}^{\alpha}({}'x) = L_{(2)}''^{\alpha}_{\alpha} \bar{F}^{\alpha}(L_{(2)}^{-1} ''x) \quad (\text{A-5.4}^{(2)})$$

$$''\bar{\Psi}_{a'} = \bar{O}_{a'a}^{(2)} \bar{\Psi}_{a'} \quad (\text{A-5.3}^{(2)})$$

$$''\bar{F}^{\alpha}({}'x) = \bar{O}^{(2)} \bar{F}^{\alpha}({}'x) \bar{O}^{(2)-1}. \quad (\text{A-5.5}^{(2)})$$

Now, substitute (5.4<sup>(1)</sup>) into (5.4<sup>(2)</sup>) i. e.

$$''\bar{F}^{\alpha}({}'x) = (L_{(2)} L_{(1)})''^{\alpha}_{\alpha} \bar{F}^{\alpha}((L_{(2)} L_{(1)})^{-1} ''x) \quad (\text{A-5.6})$$

and (A-5.5<sup>(1)</sup>) into (A-5.5<sup>(2)</sup>)

$$''\bar{F}^{\alpha}({}'x) = (\bar{O}^{(2)} \bar{O}^{(1)}) \bar{F}^{\alpha}({}'x) (\bar{O}^{(2)} \bar{O}^{(1)})^{-1}. \quad (\text{A-5.7})$$

\* We denote vectors and operators satisfying (A-5.2) by a bar, in order to distinguish them from the vectors and operators in the text and in (A-5.1).



If we eliminate  ${}^{\alpha}\bar{F}^{\alpha}({}^{\alpha}x)$  from the last two equations, we find writing  $X = \{\alpha x\}$

$$(L_{(2)} L_{(1)})^{\alpha X} {}^{\alpha}\bar{F}^X_{\alpha a b} = (\bar{O}^{(2)} \bar{O}^{(1)})_{\alpha a} {}^{\alpha}\bar{F}^X_{ab} (\bar{O}^{(2)} \bar{O}^{(1)})^{-1}_{b b}. \quad (\text{A-5.8})$$

Thus, it seems to follow from (A-5.8) that  $\{e^{\check{J}^{\alpha}\bar{O}}\}$  is a representation of  $\{L\}$ . This is of course contradictory to the theory presented in the text (§ 3). C. PIRON and H. RUEGG shall publish a note in this journal, which shows how the two contradictory points of view can be understood.

### Bibliography

- <sup>1)</sup> E. C. G. STUECKELBERG, *Helv. Phys. Acta* 32 (4), 254 (1959), and CERN, *Theoretical Study Division* 59, 22 (1959).
- <sup>2)</sup> E. C. G. STUECKELBERG and D. RIVIER, *Helv. Phys. Acta* 19, 239 (1946).
- <sup>3)</sup> D. FINKELSTEIN, J. M. JAUCH and D. SPEISER, CERN 59-7, 59-9, 59-17, *Theoretical Study Division* (1959). See also: *Helv. Phys. Acta* 32 (4), 258 (1959).
- <sup>4)</sup> E. C. G. STUECKELBERG and G. WANDERS, *Helv. Phys. Acta* 26, 307 (1953).
- <sup>5)</sup> E. C. G. STUECKELBERG, *Helv. Phys. Acta* 26, 417 (1953).
- <sup>6)</sup> E. C. G. STUECKELBERG, *Helv. Phys. Acta* 33, 605 (1960).
- <sup>7)</sup> E. C. G. STUECKELBERG, *Thermodynamique* (in preparation, Birkhäuser Verlag Basel).
- <sup>8)</sup> E. C. G. STUECKELBERG, *Helv. Phys. Acta* 25, 577 (1952).
- <sup>9)</sup> M. INAGAKI, C. PIRON and G. WANDERS, *Helv. Phys. Acta* 27, 41 (1954).
- <sup>10)</sup> E. T. WHITTAKER, *Analytical Dynamics*, Chap. 10 § 118.
- <sup>11)</sup> J. M. JAUCH and F. ROHRICH, *The theory of Photons and Electrons*, Addison-Wesley, Cambridge (Mass.) 1955.
- <sup>12)</sup> W. PAULI, *Nuov. Cim.*, 10, 648 (1953).

# Integral Representations for the Vacuum Expectation Value of Three Scalar Local Fields

by **Gunnar Källén** and **John Toll\***

Department of Theoretical Physics, University of Lund, Sweden

*Summary.* The integral formula of S. BERGMAN and A. WEIL for the representation of an analytic function of several complex variables is applied to the vacuum expectation value of three scalar local fields. Several versions of the result are given. The various formulae are connected with each other by integral transformations (Hankel transforms). One of the versions reads

$$F(z) = \int_0^\infty d^3a \prod_{k=1}^3 \Delta_2^{(+)}(z_k, a_k) \int_0^\infty d\tau \sum_{i=0}^3 \psi_i(a, \tau) f_i(z, \tau),$$

$$f_1(z, \tau) = \frac{\log(-\tau z_1) - \log(\tau - z_2) - \log(\tau - z_3)}{\tau z_1 + (\tau - z_2)(\tau - z_3)} \text{cycl.},$$

$$f_0(z, \tau) = \frac{\log(\tau - z_1) + \log(\tau - z_2) + \log(\tau - z_3) - \log(-z_1) - \log(-z_2) - \log(-z_3)}{\tau^2 - \tau(z_1 + z_2 + z_3) + z_1 z_2 + z_1 z_3 + z_2 z_3}.$$

The functions  $\psi_i(a, \tau)$  are arbitrary weight functions. It is assumed that both the weights and the function  $F(z)$  are sufficiently bounded at infinity. The three terms above with  $i = 1, 2$  or  $3$  can be related to simple Feynman diagrams, while we have not been able to find such an interpretation of the remaining term.

## Introduction

Consider the vacuum expectation value of three scalar fields  $A(x)$ ,  $B(x')$  and  $C(x'')$

$$F^{ABC}(x - x', x' - x'') = \langle 0 | A(x) B(x') C(x'') | 0 \rangle = \\ = \frac{1}{(2\pi)^6} \iint d\hat{p} d\hat{p}' e^{i\hat{p}(x-x') + i\hat{p}'(x'-x'')} G^{ABC}(\hat{p}^2, \hat{p}'^2, (\hat{p} - \hat{p}')^2) \Theta(\hat{p}) \Theta(\hat{p}'). \quad (1)$$

The physical requirement that every eigenvalue of the energy momentum operators of the theory is time-like with positive energy implies that the function  $G^{ABC}(\hat{p}^2, \hat{p}'^2, (\hat{p} - \hat{p}')^2)$  is different from zero only when both  $\hat{p}^2$  and  $\hat{p}'^2$  are negative (we use the metric with  $\hat{p}^2 = \bar{\hat{p}}^2 - \hat{p}_0^2$ , etc.) and when  $(\hat{p} - \hat{p}')^2 > ((-\hat{p}^2)^{1/2} - (-\hat{p}'^2)^{1/2})^2$ . These properties of  $G$  ensure that the function  $F$  is the boundary value of an analytic function  $F^{ABC}(z_k)$  regular in a domain bounded by the following analytic hypersurfaces<sup>1) 2)</sup>

\*) JOHN SIMON GUGGENHEIM Memorial Foundation Fellow 1958-1959, on leave from Department of Physics, University of Maryland, College Park, Maryland (USA).

(i) The  $z_1$ -cut and the  $z_2$ -cut, i.e. the two analytic hypersurfaces  $z_k = r$ ;  $r > 0$  and  $k = 1$  or  $2$ .

(ii) The analytic hypersurface  $F_{12}$  defined by  $z_3 = z_1 + z_2 + r + (z_1 z_2)/r$ ;  $r > 0$  (relevant only when  $\text{Im } z_1 \cdot \text{Im } z_2 \geq 0$ ).

(iii) The analytic hypersurface  $S$  defined by  $z_3 = z_1(1 - k) + z_2(1 - 1/k)$ ;  $k > 0$  (relevant only when  $\text{Im } z_1 \cdot \text{Im } z_2 \leq 0$ ).

Here,  $z_1 = -(x - x')^2$ ,  $z_2 = -(x - x'')^2$  and  $z_3 = -(x' - x'')^2$  and the physical values of  $F$  are obtained as the boundary values for  $x - x'$  and  $x' - x''$  having infinitesimal imaginary parts in the back ward light cone. The analyticity domain for  $F$  is the intersection of the domains bounded by these hypersurfaces and such that the points with  $z_k = -x_k$  and  $\lambda(x) = x_1^2 + x_2^2 + x_3^2 - 2x_1x_2 - 2x_2x_3 - 2x_1x_3 < 0$  are inside the domain. Obviously, this domain is a natural domain of holomorphy<sup>2)</sup>. If we consider a 'local' theory, i.e. a theory where all field operators commute for space-like separations, the analyticity domain of  $F$  is much larger than the domain described above. This large domain is also known and is bounded by the following analytic hypersurfaces<sup>1)</sup>.

(iv) The  $z_k$ -cuts with  $k = 1, 2$  or  $3$ .

(v) The analytic hypersurfaces  $F'_{kl}$  defined by  $\sqrt{-rz_m} + \sqrt{r - z_k} \cdot \sqrt{r - z_l} = 0$ . Here,  $r$  is a positive, real number. All square roots are defined to have positive real parts. This convention is easily shown to be equivalent to the sign conventions for the imaginary parts of  $z_k$  given in KW. Further,  $k, l$ , and  $m$  are all different, and range over 1, 2 and 3 in any permutation.

(vi) The analytic hypersurface  $\mathfrak{F}$  defined by  $\sqrt{r - z_1} \cdot \sqrt{r - z_2} \cdot \sqrt{r - z_3} + \sqrt{-z_1} \cdot \sqrt{-z_2} \cdot \sqrt{-z_3} = 0$ ;  $r > 0$ . The square roots are defined as above.

As earlier, our domain is the intersection of the domains bounded by these hypersurfaces and such that every point inside the earlier domain is also inside the new domain. For brevity, we call the domain described in (i), (ii) and (iii)  $\mathfrak{M}$  and the domain described in (iv), (v) and (vi)  $\mathfrak{U}$ . It can be shown that  $\mathfrak{U}$  is the holomorphy envelope of the union of  $\mathfrak{M}$  and two other domains obtained from  $\mathfrak{M}$  by permutations of the variables  $z_k^1$ .

If a function  $G^{ABC}$  fulfilling the conditions mentioned above concerning  $p^2$ ,  $p'^2$  and  $(p - p')^2$  but otherwise arbitrary is substituted in (1), the function  $F^{ABC}$  obtained in this way is, in general, analytic in  $\mathfrak{M}$  but not in  $\mathfrak{U}$ . In this paper we want to give a representation of the most general function analytic in  $\mathfrak{U}$  (and sufficiently bounded at infinity). This representation must contain a completely arbitrary weight function integrated over a certain kernel. Every function analytic in  $\mathfrak{U}$  must correspond to at least one possible weight function. Conversely, every weight must give a function analytic in  $\mathfrak{U}$ .

### I. The Bergman-Weil Integral

There is one systematic approach available for a representation of the kind indicated above, viz. the integral representation of S. BERGMAN and A. WEIL for a function of several complex variables, analytic in a domain bounded by analytic hypersurfaces. This integral is a generalization of the conventional Cauchy representation and reads for  $n$  variables  $z_k$ <sup>3)</sup>

$$F(z) = \frac{1}{(2\pi i)^n} \int \cdots \int d\zeta_1 \cdots d\zeta_n F(\zeta) D(z, \zeta), \quad (2)$$

$$D(z, \zeta) = \text{Det} | q_l^k(z, \zeta) |. \quad (2a)$$

The integration in (2) is performed over an  $n$ -dimensional manifold, which is a subset of the  $2n - 1$  dimensional boundary of the domain. This manifold, which is called the 'distinguished boundary', consists of the *common intersection* of  $n$  out of all the analytic hypersurfaces that make up the boundary of the analyticity domain. In general, this manifold is made up of several disconnected parts and the integral in (2) is the sum over all such pieces. To each boundary surface labelled by the index  $k$  is attached a set of  $n$ -functions  $q_l^k(z, \zeta)$  fulfilling the identity

$$\sum_{l=1}^n (\zeta_l - z_l) q_l^k(z, \zeta) = 1, \quad (3)$$

as long as  $\zeta$  lies on the  $k$ :th analytic hypersurface. Further, all the  $q_l^k$  have to be analytic functions of  $z$  as long as the point  $z$  lies *inside* the analyticity domain and  $\zeta$  lies on the  $k$ :th boundary surface. The existence of such functions  $q_l^k$  can be generally proved when the boundary is made up of pieces of analytic hypersurfaces. For the particular boundary we have here, a set of functions  $q_l^k$  is explicitly constructed below. Perhaps it is worth while mentioning that these functions are not unique (for  $n > 1$ ) but that there exists an infinite number of sets of functions  $q_l^k$  for a given domain. Finally,  $F(\zeta)$  in (2) is the boundary value of the function  $F(z)$  when  $z$  approaches the point  $\zeta$  on the distinguished boundary.

It can be remarked that the formula (2) reduces to the conventional Cauchy integral for the special case  $n = 1$ . In that case, the sum in (2) consists of only one term and  $q$  is uniquely given as  $(\zeta - z)^{-1}$ . Therefore, (2) becomes just a conventional Cauchy integral. We also remark that in the case when the analyticity domain can be described as a 'topological product' of  $n$  one dimensional domains, Eq. (2) reduces to an iterated Cauchy integral. In this case, every boundary surface depends on only one of the  $n$  variables  $z$  (cf. the boundaries (i) and (iv) in the introduction) and it is possible to choose  $q_{kl}^k = \delta_{kl}(\zeta_l - z_l)^{-1}$ . Consequently, the determinant (2a) is a product of simple Cauchy denominators and Eq. (2) is

just an  $n$ -fold Cauchy integral. In this way, we can understand (2), (2a) and (3) as a generalization of the Cauchy integral to the case when the domain is bounded by general analytic hypersurfaces.

We devote the rest of this section to an explicit construction of functions  $q_l^k$  for the boundary surfaces of  $\mathcal{U}^4$ .

For the cuts  $z_k = r$  we can use the result above and choose  $q_l^k = \delta_{kl}(\zeta_l - z_l)^{-1}$ .

For the boundaries  $F'_{kl}$  we proceed in the following way. When the point  $\zeta$  lies on the surface we have

$$\sqrt{-r\zeta_m} + \sqrt{r - \zeta_k} \cdot \sqrt{r - \zeta_l} = 0; \quad (4)$$

(Here, and hereafter in this paper  $m$ ,  $k$  and  $l$  are all different and range over 1, 2 and 3 in any permutation.)

and, consequently,

$$\left. \begin{aligned} \sqrt{-rz_m} + \sqrt{r - z_k} \cdot \sqrt{r - z_l} - \sqrt{-r\zeta_m} - \sqrt{r - \zeta_k} \cdot \sqrt{r - \zeta_l} = \\ = \sqrt{-rz_m} + \sqrt{r - z_k} \cdot \sqrt{r - z_l}. \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

We can think of the surface as being parametrized by two of the three complex numbers  $\zeta$  and by the real number  $r$ . The remaining coordinate  $\zeta$  is then a function of the given numbers as shown in Eq. (4). We then proceed to write the left hand side of (5) as

$$\left. \begin{aligned} & \frac{r(\zeta_m - z_m)}{\sqrt{-rz_m} + \sqrt{-r\zeta_m}} + \frac{1}{2} (\sqrt{r - z_k} - \sqrt{r - \zeta_k}) (\sqrt{r - z_l} + \\ & + \sqrt{r - \zeta_l}) + \frac{1}{2} (\sqrt{r - z_l} - \sqrt{r - \zeta_l}) (\sqrt{r - z_k} + \sqrt{r - \zeta_k}) = \\ & = (\zeta_m - z_m) \frac{r}{\sqrt{-rz_m} + \sqrt{-r\zeta_m}} + (\zeta_k - z_k) \frac{1}{2} \frac{\sqrt{r - z_l} + \sqrt{r - \zeta_l}}{\sqrt{r - z_k} + \sqrt{r - \zeta_k}} + \\ & + (\zeta_l - z_l) \frac{1}{2} \frac{\sqrt{r - z_k} + \sqrt{r - \zeta_k}}{\sqrt{r - z_l} + \sqrt{r - \zeta_l}}. \end{aligned} \right\} \quad (6)$$

Combining (5) and (6) we find, that it is possible to choose

$$q_m^{kl} = \frac{1}{N_{kl}} \frac{\sqrt{r}}{\sqrt{-z_m} + \sqrt{-\zeta_m}}, \quad (7a)$$

$$q_k^{kl} = \frac{1}{N_{kl}} \frac{1}{2} \frac{\sqrt{r - z_l} + \sqrt{r - \zeta_l}}{\sqrt{r - z_k} + \sqrt{r - \zeta_k}}, \quad (7b)$$

$$q_l^{kl} = \frac{1}{N_{kl}} \frac{1}{2} \frac{\sqrt{r - z_k} + \sqrt{r - \zeta_k}}{\sqrt{r - z_l} + \sqrt{r - \zeta_l}}, \quad (7c)$$

$$N_{kl} = \sqrt{-rz_m} + \sqrt{r - z_k} \cdot \sqrt{r - z_l}. \quad (7d)$$



Obviously, this result is not unique. It is, e.g., possible to modify the numerator in (7b) from  $1/2 (\sqrt{r - z_l} + \sqrt{r - \zeta_l})$  to  $\sqrt{r - z_l}$  if, at the same time, the numerator in (7c) is changed to  $\sqrt{r - \zeta_k}$ . However, the choice (7a)–(7d) above is the most symmetric expression that can be obtained in this way. (Other possible functions  $q_k$  of entirely different form, e.g., utilizing logarithms instead of square roots, can also be given.)

An entirely similar argument gives the following expressions for the  $q_k^{\mathfrak{F}}$  related to the surface  $\mathfrak{F}$  mentioned under (vi) in the introduction

$$q_k^{\mathfrak{F}} = \frac{1}{6N_{\mathfrak{F}}} \left\{ \frac{1}{\sqrt{r - z_k} + \sqrt{r - \zeta_k}} \left[ 2 (\sqrt{r - z_l} \sqrt{r - z_m} + \sqrt{r - \zeta_l} \sqrt{r - \zeta_m}) + \sqrt{r - \zeta_l} \sqrt{r - z_m} + \sqrt{r - z_l} \sqrt{r - \zeta_m} \right] + \frac{1}{\sqrt{-z_k} + \sqrt{-\zeta_k}} \left[ 2 (\sqrt{-z_l} \sqrt{-z_m} + \sqrt{-\zeta_l} \sqrt{-\zeta_m}) + \sqrt{-z_l} \sqrt{-\zeta_m} + \sqrt{-\zeta_l} \sqrt{-z_m} \right] \right\}, \quad (8a)$$

$$N_{\mathfrak{F}} = \sqrt{r - z_1} \sqrt{r - z_2} \sqrt{r - z_3} + \sqrt{-z_1} \sqrt{-z_2} \sqrt{-z_3}. \quad (8b)$$

As above, other expressions which are less complicated from the algebraic point of view but also less symmetric in the variables  $z$  and  $\zeta$  can be found.

## II. The Distinguished Boundary of $\mathfrak{U}$ and the Bergman-Weil Integral for $F(z)$

The distinguished boundary of our domain is defined as the common three dimensional intersection of three out of the seven analytic hyper-surfaces that constitute our boundary. At this point, a complication arises. E.g., if we ask for the intersection of the  $z_1$ -cut, the  $z_2$ -cut and one of the surfaces  $F'_{kl}$ , we find that  $z_3$  is also real on this intersection and that it may be positive. This means, that *four* of our boundary surfaces have a common three dimensional intersection. Normally, this intersection should only have been two dimensional. Therefore, the BERGMAN-WEIL integral formula is not directly applicable in the form (2). We handle this complication by displacing the surfaces  $F'_{kl}$  slightly, so as to disentangle these degenerate intersections. Next, we write down the BERGMAN-WEIL integral for the modified domain and, afterwards, go to the limit where the surfaces  $F'_{kl}$  are put back in their original positions<sup>5)</sup>.

We then remark, that, e.g., the surface  $F'_{12}$  is relevant only when the imaginary parts of  $z_1$  and  $z_2$  have the same sign while the imaginary part of  $z_3$  has the opposite sign. Further, when this is the case,  $F'_{12}$  never intersects any other boundary surface except the cuts<sup>1)</sup>. Finally, there are

really two disconnected pieces of  $F'_{12}$  in the boundary, one piece with the imaginary part of, say,  $z_1$  positive and the other piece with the imaginary part of  $z_1$  negative. As these two pieces are entirely disconnected, we are at liberty to displace the surface  $F'_{12}$  in different ways in the two cases. We choose to take as our displaced surface

$$z_3(1 + i\varepsilon) = z_1 + z_2 - r - \frac{z_1 z_2}{r}; \quad \text{Im } z_1 \cdot \text{Im } z_2 > 0, \quad (9)$$

$$\text{Im } z_1 \cdot \text{Im } z_3 < 0, \quad \text{Im } z_1 \cdot \text{Im } [z_3(1 + i\varepsilon)] < 0,$$

where the real number  $\varepsilon$  is positive when  $\text{Im } z_1$  is negative and negative otherwise<sup>6</sup>). The intersection of this displaced surface and the  $z_1$ - and  $z_2$ -cuts is shown in Figure 1 for the case, that  $\text{Im } \zeta_1 > 0$ . The relevant part

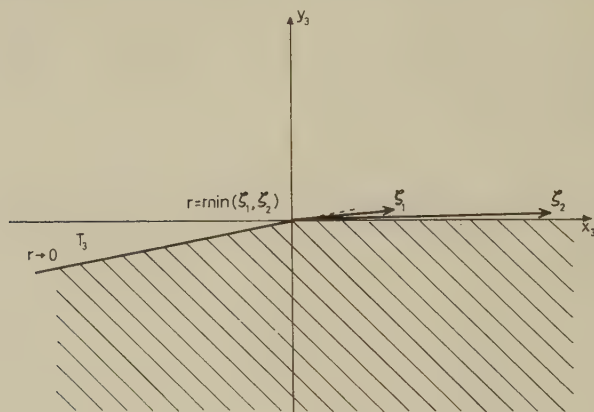


Fig. 1

The intersection  $\zeta_1$ -cut  $\cap$   $\zeta_2$ -cut  $\cap$   $F'_{12}$  shown in the  $\zeta_3$ -plane

of the surface  $F'_{12}$  is here given by a straight line from the origin and into the lower half plane with a slope given by  $-(1 + i\varepsilon)^{-1}$ . As the two  $q$ 's belonging to the two cuts are diagonal, the determinant in (2a) reduces to the simple product

$$D(z, \zeta) = \frac{1}{(\zeta_1 - z_1)(\zeta_2 - z_2)} q_3^{12}(z; \zeta; r), \quad (10)$$

$$r = -\frac{1}{2} [\zeta_3 - \zeta_1 - \zeta_2 + \sqrt{\lambda(\zeta)}], \quad (10a)$$

$$\lambda(\zeta) = (\zeta_3 - \zeta_1 - \zeta_2)^2 - 4 \zeta_1 \zeta_2, \quad (10b)$$

where we have explicitly indicated the dependence of  $q_3^{12}$  on  $r$ . Note, in particular, the sign in front of the square root in (10a). In the limit when

as  $\epsilon$  goes to zero we get the following contribution to the BERGMAN-WEIL integral

$$I = \frac{1}{(2\pi i)^3} \int_{T_3} \frac{d^3 \zeta}{(\zeta_1 - z_1)(\zeta_2 - z_2)} q_3^{12}(z; +++) F(+++). \quad (11)$$

The symbol  $F(+++)$  indicates the boundary value of  $F(z)$  which is obtained when all three complex numbers  $\zeta_k$  have an infinitesimal, positive imaginary part. The three plus signs in  $q_3^{12}$  have a similar meaning for the variables  $\zeta$ . The domain of integration in (11) is given by  $\zeta_1$  and  $\zeta_2$  each ranging independently over the positive real axis from 0 to  $\infty$ , while  $\zeta_3$  ranges over the negative real axis from  $-\infty$  to 0. We denote this domain by  $T_3$  and are later going to use the notations  $T_1$  and  $T_2$  for domains defined in an analogous way. In a similar way we also get a contribution from the other piece of  $F'_{12}$  where all signs of the imaginary parts are changed. However, this term appears with a negative sign as all complex integrations have to be done in a positive sense. The total contribution  $I'_{12}$  from this part of the distinguished boundary, viz. the common intersection of  $F'_{12}$ , the  $z_1$ -cut and the  $z_2$ -cut becomes

$$I'_{12} = \frac{1}{(2\pi i)^3} \int_{T_3} \frac{d^3 \zeta}{(\zeta_1 - z_1)(\zeta_2 - z_2)} \left[ q_3^{12}(z; +++) F(+++) - q_3^{12}(z; ---) F(---) \right]. \quad (12)$$

For the particular function  $q_3^{12}$  given in Eq. (7a), the boundary value does not depend on the way in which the variables  $\zeta_k$  approach their boundaries (at least not as long as  $\zeta \in T_3$ ). Therefore, Eq. (12) can be simplified to

$$I'_{12} = \frac{1}{(2\pi i)^3} \int_{T_3} \frac{d^3 \zeta}{(\zeta_1 - z_1)(\zeta_2 - z_2)} q_3^{12}(z; \zeta; r) [F(+++) - F(---)]. \quad (12a)$$

The expression (12) is always correct while (12a) may be wrong for another set of functions  $q_k^{12}$ .

We next consider the intersection  $z_1$ -cut  $\cap$   $z_3$ -cut  $\cap$   $F'_{12}$ . Two typical cases of this intersection are shown in Figure 2 and Figure 3. A detailed discussion similar to the one given above yields the following contribution from this part of the distinguished boundary

$$I'_{13} = \frac{1}{(2\pi i)^3} \int_{T_2 + \mathfrak{D}_1} \frac{d^3 \zeta}{(\zeta_1 - z_1)(\zeta_3 - z_3)} \left[ q_2^{12}(z; ++-; r') F(++-; r') - q_2^{12}(z; --+; r') F(--+; r') \right] - \left. \begin{aligned} & - \frac{1}{(2\pi i)^3} \int_{\mathfrak{D}_1} \frac{d^3 \zeta}{(\zeta_1 - z_1)(\zeta_3 - z_3)} [q_2^{12}(z; ++-; r) F(++-; r) - \\ & - q_2^{12}(z; --+; r) F(--+; r)], \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

$$r' = -\frac{1}{2} [\zeta_3 - \zeta_1 - \zeta_2 - \sqrt{\lambda(\zeta)}] = \frac{\zeta_1 \zeta_2}{r} > r. \quad (13a)$$

The first term in Eq. (13) contains an integration over the domain  $T_2$  defined above and an integration over the domain  $\mathfrak{D}_1$  defined as follows. In  $\mathfrak{D}_1$  all the  $\zeta_k$  are positive and fulfill the inequality  $\zeta_1 > (\sqrt{\zeta_2} + \sqrt{\zeta_3})^2$ . Other domains  $\mathfrak{D}_k$  are defined in a similar way and used below. The appearance of the domain  $T_2$  in the integration requires no further ex-

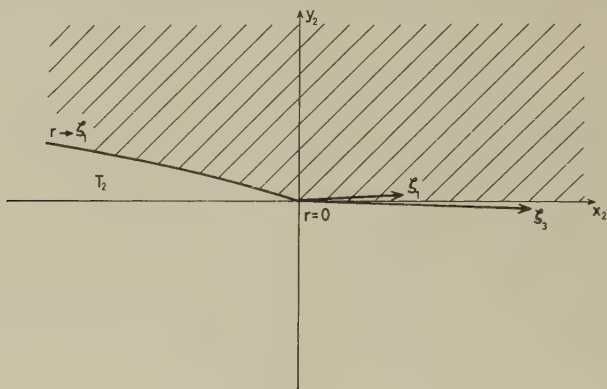


Fig. 2

The intersection  $\zeta_1$ -cut  $\cap \zeta_3$ -cut  $\cap F'_{12}$  shown in the  $\zeta_2$ -plane for the case  $\text{Re } \zeta_1 < \text{Re } \zeta_3$ ;  $\text{Im } \zeta_1 > 0$

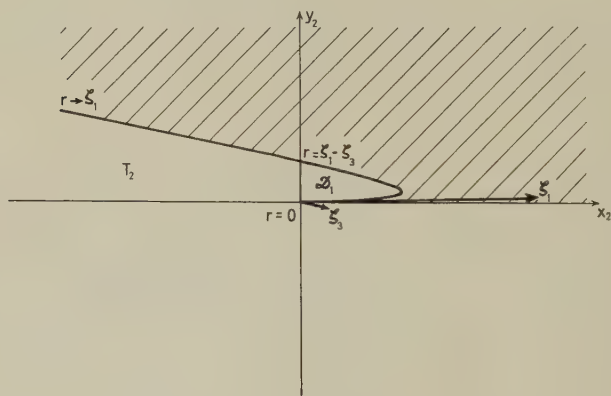


Fig. 3

The intersection  $\zeta_1$ -cut  $\cap \zeta_3$ -cut  $\cap F'_{12}$  shown in the  $\zeta_2$ -plane for the case  $\text{Re } \zeta_1 > \text{Re } \zeta_3$ ;  $\text{Im } \zeta_1 > 0$

planation. The appearance of this term is clearly shown both in Figure 2 and Figure 3. The domain  $\mathfrak{D}_1$  is shown as a 'sling' in Figure 3 for  $\zeta_1 > \zeta_3$ . As is seen in Figure 3, this domain appears twice in the integration, one contribution corresponding to the upper 'shore' in Figure 3 and the other

contribution stemming from the lower part of the sling. The values of  $r$  for the two parts differ in the sign in front of the square root  $\sqrt{\lambda(\zeta)}$  in Eqs. (13a) and (10a). Obviously, the upper part of the sling corresponds to the bigger value of  $r$  (cf. Fig. 3). The second integral in Eq. (13) corresponds to the lower part of the sling. In Eq. (13) we have denoted the two boundary values of  $F(z)$  with  $F(++-; r')$  and  $F(++-; r)$  respectively. This is done to take into consideration the possibility that the function  $F(z)$  might have different boundary values on the two parts of the sling. In practical applications, this might not be the case. When the boundary value of  $F(z)$  is the same on both cases, Eq. (13) can be somewhat simplified in so far as the terms containing  $q_2^{12}$  with the same value of  $\zeta$  but different values of  $r$  can be lumped together.

For the particular functions  $q_m^{kl}$  shown in Eqs. (7) it is not possible to simplify Eq. (13) in a way similar to the simplification which led from Eq. (12) to Eq. (12a). In  $\mathfrak{D}_1$  one has  $\zeta_2 < r < \zeta_1$ . Therefore, the square root  $\sqrt{r - \zeta_1}$  in the denominator has different values when  $\zeta_1$  is located on different sides of its cut.

The two expressions (12) and (13) can be considered as typical examples of contributions  $I_{kl}^{kl}$  to the BERGMAN-WEIL integral. All in all, there are nine integrals of this kind. By symmetry arguments one finds that they can be written in the following two standard forms

$$I_{kl}^{kl} = \frac{1}{(2\pi i)^3} \int_{T_m} \frac{d^3 \zeta}{(\zeta_k - z_k)(\zeta_l - z_l)} [q_m^{kl}(z; \zeta_+; r) F(\zeta_+) - q_m^{kl}(z; \zeta_-; r) F(\zeta_-)] , \quad (14a)$$

and

$$I_{km}^{kl} = \frac{1}{(2\pi i)^3} \int_{T_l + \mathfrak{D}_k} \frac{d^3 \zeta}{(\zeta_k - z_k)(\zeta_m - z_m)} [q_l^{kl}(z; \zeta_+; r') F(\zeta_+; r') - q_l^{kl}(z; \zeta_-; r') F(\zeta_-; r')] - \frac{1}{(2\pi i)^3} \int_{\mathfrak{D}_k} \frac{d^3 \zeta}{(\zeta_k - z_k)(\zeta_m - z_m)} [q_l^{kl}(z; \zeta_+; r) F(\zeta_+; r) - q_l^{kl}(z; \zeta_-; r) F(\zeta_-; r)] . \quad (14b)$$

The symbol  $\zeta_+$  in (14a) and (14b) indicates that the point  $\zeta$  approaches the distinguished boundary in such a way that  $\zeta_k$  and  $\zeta_l$  both lie above the real axis while  $\zeta_m$  is located just below the real axis. For  $\zeta_-$  the situation is reversed. When the integration goes over the domain  $T_l$  it does not matter from which side  $\zeta_l$  approaches the negative real axis.

We now turn to a discussion of that part of the distinguished boundary which is related to the surface  $\mathfrak{F}$ . For  $\mathfrak{F}$  to be relevant one has to have the same sign for all imaginary parts of  $z_k$ . As before, the two cases when all imaginary parts are positive and when they all are negative, correspond



to two disconnected pieces of the boundary. In this case also, we have the complication that the surface  $\mathfrak{F}$  and the three cuts have a common, three-dimensional intersection. Therefore, we displace  $\mathfrak{F}$  as before and do it in different ways in the two cases. We find it convenient to define our displaced surface from

$$z_3(1 + i\varepsilon) = \frac{(r - z_1)(r - z_2)}{r - z_1 - z_2}; \quad \text{Im } z_k \cdot \text{Im } z_1 > 0, \\ \text{Im } [z_3(1 + i\varepsilon)] \cdot \text{Im } z_1 > 0, \quad (15)$$

where the sign of  $\varepsilon$  is the same as the sign of the imaginary parts of  $z_k$ .

The different intersections  $z_k$ -cut  $\cap z_l$ -cut  $\cap \mathfrak{F}$  are illustrated in Figures 4-6. A discussion, entirely similar to the argument above, gives

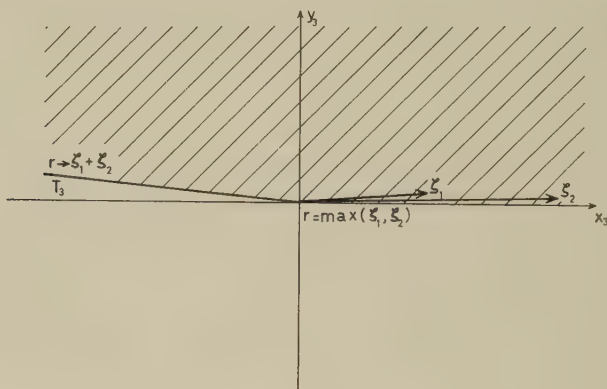


Fig. 4

The intersection  $\zeta_1$ -cut  $\cap \zeta_2$ -cut  $\cap \mathfrak{F}$  shown in the  $\zeta_3$ -plane for the case  $\text{Im } \zeta_k > 0$

the following contribution to the BERGMAN-WEIL integral from this part of the distinguished boundary

$$I_{12}^{\mathfrak{F}} = \frac{-1}{(2\pi i)^3} \int_{T_3} \frac{d^3 \zeta}{(\zeta_1 - z_1)(\zeta_2 - z_2)} \left[ q_3^{\mathfrak{F}}(z; \zeta_+; r') F(\zeta_+) - \right. \\ \left. - q_3^{\mathfrak{F}}(z; \zeta_-; r') F(\zeta_-) \right], \quad (16a)$$

$$I_{23}^{\mathfrak{F}} = \frac{1}{(2\pi i)^3} \int_{T_1 + \mathfrak{D}_3 - \mathfrak{D}_1} \frac{d^3 \zeta}{(\zeta_2 - z_2)(\zeta_3 - z_3)} \left[ q_1^{\mathfrak{F}}(z; \zeta_+; r') F(\zeta_+; r') - \right. \\ \left. - q_1^{\mathfrak{F}}(z; \zeta_-; r') F(\zeta_-; r') \right] + \\ + \frac{1}{(2\pi i)^3} \int_{\mathfrak{D}_3 - \mathfrak{D}_1} \frac{d^3 \zeta}{(\zeta_2 - z_2)(\zeta_3 - z_3)} \left[ q_1^{\mathfrak{F}}(z; \zeta_+; r) F(\zeta_+; r) - \right. \\ \left. - q_1^{\mathfrak{F}}(z; \zeta_-; r) F(\zeta_-; r) \right], \quad (16b)$$

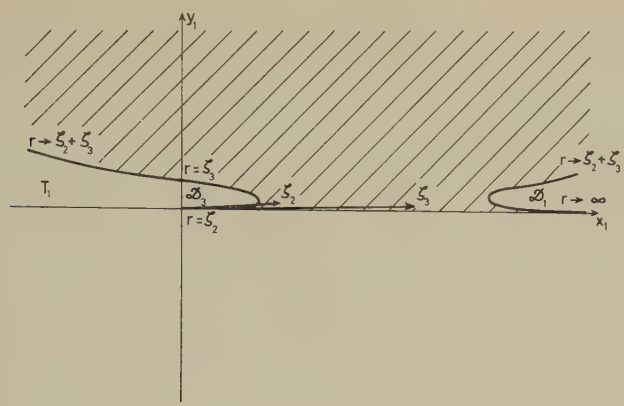


Fig. 5

The intersection  $\zeta_2$ -cut  $\cap$   $\zeta_3$ -cut  $\cap$   $\mathfrak{F}$  shown in the  $\zeta_1$ -plane for the case  $\text{Im } \zeta_k > 0$ ;  
 $\text{Re } \zeta_3 > \text{Re } \zeta_2$

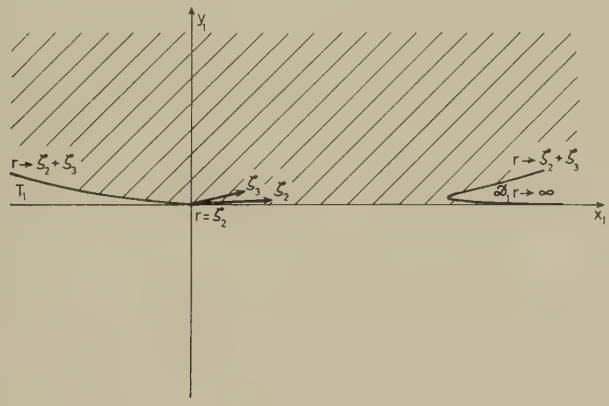


Fig. 6

The intersection  $\zeta_2$ -cut  $\cap$   $\zeta_3$ -cut  $\cap$   $\mathfrak{F}$  shown in the  $\zeta_1$ -plane for the case  $\text{Im } \zeta_k > 0$ ;  
 $\text{Re } \zeta_3 < \text{Re } \zeta_2$

$$r = \frac{1}{2} \left[ \zeta_1 + \zeta_2 + \zeta_3 - \sqrt{\lambda(\zeta)} \right], \tag{16c}$$

$$r' = \frac{1}{2} \left[ \zeta_1 + \zeta_2 + \zeta_3 + \sqrt{\lambda(\zeta)} \right] > r. \tag{16d}$$

Apart from the two terms exhibited in (16a) and (16b) there is one more contribution to the BERGMAN-WEIL integral from this part of the distinguished boundary, which should be denoted by  $I_{13}^{\mathfrak{F}}$ . This term is completely analogous to the contribution  $I_{23}^{\mathfrak{F}}$  in (16b) and is obtained from that expression by a permutation of the indices 1 and 2. The two terms in

(16b) are integrated over a domain which is denoted by  $\mathfrak{D}_3 - \mathfrak{D}_1$ . By this we mean that we integrate over the two domains  $\mathfrak{D}_3$  and  $\mathfrak{D}_1$  but that the contribution from the last domain is given a negative sign. The other notations in Eqs. (16) are then self explanatory.

We note that there are two integrals over the domain  $\mathfrak{D}_3$  in  $I_{23}^{\mathfrak{F}}$  and that there are two corresponding integrals in  $I_{13}^{\mathfrak{F}}$ . If we add corresponding terms in  $I_{13}^{\mathfrak{F}}$  to each term in  $I_{23}^{\mathfrak{F}}$  and then use the identity (3) under the integral sign, once for the terms for  $r$  and again for the terms  $r'$ , we find that the sum of the two integrals reduces to an expression which is completely analogous to the two terms which are integrated over  $\mathfrak{D}_1$  and  $\mathfrak{D}_2$ . In this way, the sum of the terms  $I_{kl}^{\mathfrak{F}}$  is completely symmetric under a permutation of the indices 1, 2 and 3 in spite of the unsymmetric displacement (15) of the surface  $\mathfrak{F}$ . The total contribution from this part of the distinguished boundary now becomes a sum of six terms, all of which can be written in one or the other of the following two standard forms

$$I_{I_k}^{\mathfrak{F}} = \frac{-1}{(2\pi i)^3} \int_{T_k} \frac{d^3 \zeta}{(\zeta_l - z_l)(\zeta_m - z_m)} \left[ q_k^{\mathfrak{F}}(z; \zeta_+, r') F(\zeta_+) - \right. \\ \left. - q_k^{\mathfrak{F}}(z; \zeta_-, r') F(\zeta_-) \right], \quad (17a)$$

$$I_{\mathfrak{D}_k}^{\mathfrak{F}} = \frac{1}{(2\pi i)^3} \int_{\mathfrak{D}_k} \frac{d^3 \zeta}{(\zeta_l - z_l)(\zeta_m - z_m)} \left[ q_k^{\mathfrak{F}}(z; \zeta_+, r') F(\zeta_+; r') - \right. \\ \left. - q_k^{\mathfrak{F}}(z; \zeta_+, r) F(\zeta_+; r) - q_k^{\mathfrak{F}}(z; \zeta_-, r') F(\zeta_-; r') + \right. \\ \left. + q_k^{\mathfrak{F}}(z; \zeta_-, r) F(\zeta_-; r) \right]. \quad (17b)$$

Note that the symbols  $\zeta_+$  and  $\zeta_-$  in Eqs. (16) and (17) have a different meaning from before and now indicate, that *all* variables  $\zeta_k$  lie either above or below the real axis.

The rest of the distinguished boundary is empty as neither the relevant parts of the three cuts nor any two of the more complicated surfaces ever intersect except in manifolds of lower dimension. (E.g., the three cuts do intersect on a three dimensional set, but this intersection is irrelevant since it lies outside the domain  $\mathfrak{U}$  and touches the domain only on the two dimensional subset where these three cuts intersect one of the other surfaces, even after distortions, that is where one of the  $z_k$  is zero). We thus have the following representation of the most general function  $F(z)$  regular in  $\mathfrak{U}$  and sufficiently bounded at infinity.

$$F(z) = \sum_{k < l} (I_{kl}^{kl} + I_{km}^{kl} + I_{lm}^{kl}) + \sum_{k=1}^3 (I_{I_k}^{\mathfrak{F}} + I_{\mathfrak{D}_k}^{\mathfrak{F}}), \quad (18)$$

where the various integrals  $I$  are defined in Eqs. (14) and (17).

The representation (18) contains the boundary value of the function  $F(z)$  on the distinguished boundary as a weight function. As has already been remarked earlier<sup>1)</sup>, the distinguished boundary consists of only 'physical points' and (18) allows an explicit computation of the value of the function  $F(z)$  in an arbitrary point inside the regularity domain  $\mathfrak{U}$  when the values in these physical points are known. Therefore, no knowledge of a function in some 'unphysical region' is necessary for an application of this formula. The actual evaluation of the integrals  $I$  above might, of course, be very complicated.

We also want to remark that, if we substitute an arbitrary weight function (decreasing sufficiently rapidly at infinity to make the integrals convergent) in (18) instead of the boundary values of  $F(z)$ , the resulting function can have no singularities except on the cuts and where the functions  $q_i^k$  are non-analytic, i. e. on or beyond the boundary of  $\mathfrak{U}$ . Therefore, an arbitrary weight, substituted in (18) yields a function regular at least in  $\mathfrak{U}$ . However, it must not be supposed that this function has the given weight as boundary value. In general, this will not be the case. This phenomenon is quite analogous to the behaviour of the conventional Cauchy integral where an arbitrary weight function gives an analytic function, the boundary value of which is, in general, not equal to the given weight.

### III. Alternative Versions of the Integral Representation (18)

The discussion in the previous section has provided us with an integral representation of the most general function  $F(z)$  regular in our domain  $\mathfrak{U}$  and sufficiently bounded at infinity. However, for practical applications this formula (Eq. (18)) is somewhat involved, but it can be simplified to a certain extent if we are willing to introduce one more integration and to write our representation as an integral over four variables instead of three. To see this, we observe that the dependence on  $z_k$  in every term of (18) can be written in the form  $(\zeta_k - z_k)^{-1} (\zeta_l - z_l)^{-1} q(z, \zeta)$  where the  $q$ 's are given by Eqs. (7) and (8). (Cf. Eqs. (14) and (17).) Closer inspection shows that the  $q$ 's themselves can be written in the form  $N^{-1} Q(z, \zeta)$  where  $Q(z, \zeta)$  is a function which is regular, analytic in the topological product of the cut planes in the variables  $z_k$ . The denominators  $N$  are given by Eqs. (7d) and (8b). It follows that the kernel in each term of (18) can be written as  $N^{-1} \tilde{Q}(z, \zeta)$  where  $\tilde{Q}(z, \zeta)$  is another function regular in the whole cut planes and behaving at infinity not worse than  $(z_1 z_2 z_3)^{-1/2}$ . Such a function can be represented in the form

$$\tilde{Q}(z, \zeta) = \int_0^\infty \int_0^\infty \int_0^\infty \frac{da_1 da_2 da_3 P(a_k, \zeta)}{(a_1 - z_1) (a_2 - z_2) (a_3 - z_3)} , \quad (19)$$

where the weight  $P(a, \zeta)$  is given by an 'iterated jump' of the function  $\tilde{Q}(z, \zeta)$ . As an example, we can look at the kernel in Eq. (12), where  $q_3^{12}$  is given by Eq. (7a). For this case we get

$$\tilde{Q}(z, \zeta) = \frac{1}{(\zeta_1 - z_1)(\zeta_2 - z_2)} \frac{\sqrt{r}}{\sqrt{-z_3} + \sqrt{-\zeta_3}}, \quad (20a)$$

$$P(a, \zeta) = \frac{\sqrt{ra_3}}{\pi} \frac{\delta(a_1 - \zeta_1) \delta(a_2 - \zeta_2)}{a_3 - \zeta_3} \Theta(-\zeta_3). \quad (20b)$$

The factor  $\Theta(-\zeta_3)$ , which is 1 for negative  $\zeta_3$  and vanishes for positive  $\zeta_3$ , is inserted so that this particular  $P(a, \zeta, r)$  will be non-zero only in  $T_3$ , which is the only domain in which  $q_3^{12}$  appears in the integral. Similarly the terms in (18) involving  $q_2^{12}(z; ++-; r)$  can be taken care of by defining  $P(a, \zeta_+, r)$  appropriately in the domain where  $\zeta \in \mathfrak{D}_1$  and  $0 < r < \sqrt{\zeta_1 \zeta_2}$ . The terms involving  $q_2^{12}(z; ++-; r')$  can be treated in the same way by setting  $r' = r$  and defining  $P(a, \zeta_+, r)$  appropriately in the domain  $\zeta \in T_2 + \mathfrak{D}_1$  and  $r > \sqrt{\zeta_1 \zeta_2}$ . The other terms in (18) can be handled in a similar way and the corresponding weights computed, but the results are uninteresting for our applications and we do not want to give the details. After a treatment of this kind, all terms involving, e.g.,  $q_k^{12}$  can be represented with the aid of the expression  $(N_{12})^{-1} \tilde{Q}$ . The function  $\tilde{Q}$  is given by (19) above, where, however, the weight  $P$  is the sum of the expression (20b) and other similar contributions coming from the other terms in (18). The net result is that the whole function  $F(z)$  in (18) can now be represented in the following form

$$F(z) = \int_0^\infty \frac{d^3 a}{(a_1 - z_1)(a_2 - z_2)(a_3 - z_3)} \int_0^\infty dr \left[ \frac{\varphi_1(a_k, r)}{N_1(z_k, r)} + \right. \\ \left. + \frac{\varphi_2(a_k, r)}{N_2(z_k, r)} + \frac{\varphi_3(a_k, r)}{N_3(z_k, r)} + \frac{\varphi_0(a_k, r)}{N_0(z_k, r)} \right], \quad (21)$$

$$N_1(z_k, r) = N_{23}(z_k, r) \text{ cycl.}, \quad (21a)$$

$$N_0(z_k, r) = N_{\bar{3}}(z_k, r), \quad (21b)$$

$$\varphi_1(a_k, r) = \frac{1}{(2\pi i)^3} \int d^3 \zeta \left[ \delta \left( r + \frac{1}{2} (\zeta_3 - \zeta_1 - \zeta_2 + \sqrt{\lambda(\zeta)}) \right) + \right. \\ \left. + \delta \left( r + \frac{1}{2} (\zeta_3 - \zeta_1 - \zeta_2 - \sqrt{\lambda(\zeta)}) \right) \right] \cdot \\ \cdot [P(a_k, \zeta_+, r) F(\zeta_+, r) + P(a_k, \zeta_-, r) F(\zeta_-, r)], \text{ etc.} \quad (21c)$$

The integration over  $\zeta$  in (21c) goes over the whole distinguished boundary. This expression has the same property as the formula (18), viz. that every function  $F(z)$  regular in  $\mathfrak{U}$  and sufficiently bounded at infinity can



be represented in this way. Further, an arbitrary set of weight functions  $\varphi_i(a_k, r)$  (also sufficiently bounded at infinity) yields a function  $F(z)$  regular in  $\mathfrak{U}$  when substituted into (21). However, we presumably have the same lack of uniqueness in (21) as in (18), viz. that the *same* function  $F(z)$  can presumably be represented by an infinite number of weights  $\varphi_i(a_k, r)$ .

We can give several alternative versions of the expression above. First of all, the Cauchy denominators can be replaced by functions  $\Delta_2^{(+)}(z, a)$  if we perform a Hankel transform in the variable  $a_k$ . The function  $\Delta_2^{(+)}$  is the conventional singular function with positive frequencies defined by

$$\Delta_2^{(+)}(z, a) = -\frac{a}{8\pi} \frac{H_1^{(1)}(\sqrt{az})}{\sqrt{az}} - \frac{1}{i\pi} \int_0^\infty \frac{db \bar{\Delta}(b, a)}{b-z}, \quad (22a)$$

$$\bar{\Delta}(a, b) = \frac{\delta(a)}{4\pi} - \frac{\Theta(ab)}{8\pi} b \frac{J_1(\sqrt{ab})}{\sqrt{ab}}, \quad (22b)$$

where  $H_1^{(1)}$  and  $J_1$  are the conventional Hankel and Bessel functions of order one. Formally, the function  $\bar{\Delta}(a, b)$  fulfills the relation

$$\int_0^\infty d\zeta \bar{\Delta}(a, \zeta) \bar{\Delta}(\zeta, b) = \frac{1}{16\pi^2} \delta(a-b); \quad a \geq 0, b \geq 0. \quad (23)$$

Eq. (23) expresses the orthonormality relation between Bessel functions usually exploited in connection with Hankel transforms<sup>7)</sup>.

From (23) and (22a) we get the following representation of  $(a-z)^{-1}$

$$\frac{1}{a-z} = 16\pi^3 i \int_0^\infty db \Delta_2^{(+)}(z, b) \bar{\Delta}(b, a). \quad (23a)$$

If this representation of the Cauchy denominator is used in Eq. (21) we find that the whole formula can be written as

$$F(z) = \left. \begin{aligned} &\int_0^\infty d^3a \Delta_2^{(+)}(z_1, a_1) \Delta_2^{(+)}(z_2, a_2) \Delta_2^{(+)}(z_3, a_3) \cdot \\ &\cdot \int_0^\infty dr \left[ \frac{\tilde{\varphi}_1}{N_1} + \frac{\tilde{\varphi}_2}{N_2} + \frac{\tilde{\varphi}_3}{N_3} + \frac{\tilde{\varphi}_0}{N_0} \right]. \end{aligned} \right\} \quad (24)$$

The new weight functions  $\tilde{\varphi}_i(a_k, r)$  are related to the weights  $\varphi_i(a_k, r)$  in Eq. (21) with the aid of the following set of formulae

$$\tilde{\varphi}_i(a, r) = (16\pi^3 i)^3 \int_0^\infty d^3b \prod_{k=1}^3 \bar{\Delta}(a_k, b_k) \varphi_i(b, r), \quad (25a)$$

$$\text{and} \quad \varphi_i(a, r) = \frac{i}{\pi^3} \int_0^\infty d^3b \prod_{k=1}^3 \bar{\Delta}(a_k, b_k) \tilde{\varphi}_i(b, r). \quad (25b)$$

This alternative version is particularly interesting because of the following remark. The expressions  $N_i^{-1}$  are themselves regular in  $\mathfrak{U}$  and, consequently, have Fourier transforms with support only in or on the forward light cones. Further, the Fourier transform of the product

$$\prod_{k=1}^3 \Delta_2^{(+)}(z_k, a_k)$$

is different from zero only when the two vectors  $p$  and  $p'$  fulfill the conditions  $-p^2 \geq (\sqrt{a_1} + \sqrt{a_3})^2$ ;  $-p'^2 \geq (\sqrt{a_2} + \sqrt{a_3})^2$ . The Fourier transform of  $F(z)$  is then a convolution integral of these two expressions. Obviously, this convolution has the same support properties as the Fourier transform of the product of the  $\Delta_2^{(+)}$ -functions. Consequently, if the range of integration of the variables  $a_k$  is restricted to go from certain lower limits  $a_k^{(0)}$  to infinity, the Fourier transform of the function  $F(z)$  has the support property that it vanishes unless  $-p^2 \geq (\sqrt{a_1^{(0)}} + \sqrt{a_3^{(0)}})^2$  and  $-p'^2 \geq (\sqrt{a_2^{(0)}} + \sqrt{a_3^{(0)}})^2$ . This remark is of interest if one is asking for a representation of a function corresponding to the vacuum expectation value of a product of three local fields where the details of the mass spectrum is also taken into consideration. (Cf. KW p. 12.) Eq. (24) allows us to write down examples of functions  $F(z)$  with the correct support property in  $p$ -space and with singularities over the whole boundary of  $\mathfrak{U}$  in  $x$ -space. This verifies that the restrictions following from the mass spectrum do not change the domain of analyticity in  $x$ -space. However, we have not been able to prove that *every* function with these support properties in  $p$ -space and regular in  $\mathfrak{U}$  can necessarily be represented with the aid of (24) with at least one set of weight functions  $\varphi_i(a, r)$ .

One further modification can also be mentioned. The denominators  $N_i$  can be replaced by other expressions obtained by multiplying  $N_i$  by a function  $X_i$  regular and different from zero in the cut planes (and suitably bounded at infinity). The following factors are of particular interest in this connection.

$$X_1 = \frac{1}{r} \left( \sqrt{-rz_1} - \sqrt{r-z_2} \sqrt{r-z_3} \right) \left[ \log(-rz_1) - \right. \\ \left. - \log(r-z_2) - \log(r-z_3) \right]^{-1}. \quad \left. \right\} \quad (26a)$$

Two other functions  $X_2$  and  $X_3$  are defined in a similar way and can be obtained from  $X_1$  after obvious permutations. Further,

$$X_0 = \frac{1}{r} \left( \sqrt{r-z_1} \sqrt{r-z_2} \sqrt{r-z_3} - \right. \\ \left. - \sqrt{-z_1} \sqrt{-z_2} \sqrt{-z_3} \right) \left[ \log(r-z_1) + \log(r-z_2) + \right. \\ \left. + \log(r-z_3) - \log(-z_1) - \log(-z_2) - \log(-z_3) \right]^{-1}. \quad \left. \right\} \quad (26b)$$

The square roots are defined as before and the logarithms are made unique by the prescription  $-\pi \leq \text{Im} \log(\dots) \leq \pi$ . As these factors  $X_i$  have neither zeros nor singularities except on the positive real axes, the whole expression (24) can be replaced by

$$F(z) = \int_0^\infty d^3a \prod_{k=1}^3 \Delta_2^{(+)}(z_k, a_k) \int_0^\infty dr \sum_{i=0}^3 \psi_i(a, r) f_i(z, r), \quad (27)$$

$$f_1(z, r) = \frac{\log(-rz_1) - \log(r-z_2) - \log(r-z_3)}{rz_1 + (r-z_2)(r-z_3)} \text{cycl.} \quad (27a)$$

$$f_0(z, r) = \frac{\log(r-z_1) + \log(r-z_2) + \log(r-z_3) - \log(-z_1) - \log(-z_2) - \log(-z_3)}{r^2 - r(z_1+z_2+z_3) + z_1z_2 + z_1z_3 + z_2z_3}. \quad (27b)$$

Various other modifications of these formulae are also possible. One can, e.g., make a Hankel transform with respect to the variables  $a$  in (27) and replace the Hankel functions  $\Delta_2^{(+)}$  by Cauchy denominators. One can also make a Hankel transform with respect to the variable  $r$  in Eq. (27), Eq. (24) or in Eq. (21). We do not want to write down in detail all the possible modifications which can be obtained in this way. Of course, one always assumes that the weight functions obtained after such formal operations are sufficiently bounded to make the resulting integrals convergent. If that is not the case, certain counter terms have to be added in our representations, so as to make the integrals meaningful.

#### IV. Comparison with Perturbation Theory

The representation given above for a function  $F(z)$  analytic in the domain  $\mathfrak{U}$  and sufficiently bounded at infinity has been obtained on the basis of very general arguments. We have used the result of KW concerning the shape of the domain  $\mathfrak{U}$  and the BERGMAN-WEIL integral technique for the representation of our function. This means that our whole argument is based only on the assumptions of Lorentz invariance, local commutativity and reasonable mass spectrum (cf. KW). As is well known, the results obtained in this way are compatible with perturbation theory, but the examples one has been able to construct from perturbation theory have a domain of analyticity which is larger than the domain  $\mathfrak{U}$ . In particular, it has so far been impossible to find any trace of the surface  $\mathfrak{F}$  in perturbation theory examples, while singularities can be obtained in arbitrary points on the surfaces  $F'_{kl}$  (cf. appendix III of KW).

In view of these facts it is tempting to try to relate the terms with  $i = 1, 2$  and  $3$  in our representations to perturbation theory expressions. As a matter of fact, it is possible to recognize the Hankel transform with respect to the variable  $r$  of those three terms in the representation (27),

which stem from the surfaces  $F'_{kl}$ , as perturbation theory examples. For this purpose, we consider nine scalar fields  $\phi_1, \dots, \phi_6, \psi_1, \dots, \psi_3$  interacting with the aid of the following Lagrangian

$$\mathcal{L} = g_1 \phi_4(x) \phi_5(x) \phi_6(x) + g_2 [\psi_1(x) \phi_1(x) \phi_3(x) \phi_4(x) + \psi_2(x) \phi_1(x) \phi_2(x) \phi_5(x) + \psi_3(x) \phi_2(x) \phi_3(x) \phi_6(x)] . \quad (28)$$

The fields  $\phi_i$  have masses given by  $\sqrt{a_i}$  while the masses of the fields  $\psi_i$  are irrelevant. We next define 'currents'  $j_i(x)$  by

$$j_i(x) = \frac{\delta \mathcal{L}}{\delta \psi_i(x)} ; \quad i = 1, 2 \text{ or } 3, \quad (29)$$

and consider the vacuum expectation value of the product of these three currents. Further, we use perturbation theory and expand everything in powers of  $g_1$  and  $g_2$ . The leading term is of order  $g_2^3 g_1$  and is given by

$$\begin{aligned} F(z) = \langle 0 | j_1(x) j_2(x') j_3(x'') | 0 \rangle = \\ = g_2^3 g_1 \Delta_2^{(+)}(x - x', a_1) \Delta_2^{(+)}(x' - x'', a_2) \Delta_2^{(+)}(x - x'', a_3) \cdot \\ \cdot \int dy [\Delta_R(x - y, a_4) \Delta_2^{(+)}(y - x', a_5) \Delta_2^{(+)}(y - x'', a_6) + \\ + \Delta_R(x' - y, a_5) \Delta_2^{(+)}(x - y, a_4) \Delta_2^{(+)}(y - x'', a_6) + \\ + \Delta_R(x'' - y, a_6) \Delta_2^{(+)}(x - y, a_4) \Delta_2^{(+)}(x' - y, a_5)] . \end{aligned} \quad (30)$$

The complex variables  $z_k$  are defined by  $z_1 = -(x - x')^2$ ;  $z_2 = -(x' - x'')^2$  and  $z_3 = -(x - x'')^2$ . The first three factors in (30) correspond exactly to the product of the three  $\Delta_2^{(+)}$  functions in (27). The expression inside the square bracket in (30) is the same as the perturbation theory example treated in appendix III of KW in Eqs. (A. 54)–(A. 59). It was there shown that the Hankel transform of this expression with the aid of the function  $\bar{\Delta}(a, b)$  can be written as

$$\begin{aligned} \int d^3b \prod_{k=4}^6 \bar{\Delta}(a_k, b_k) \int dy [\dots] = \\ = \text{const} \iiint_0^1 \frac{d\alpha_1 d\alpha_2 d\alpha_3 \delta(1 - \alpha_1 - \alpha_2 - \alpha_3)}{[z_1 \alpha_2 \alpha_3 + z_2 \alpha_3 \alpha_1 + z_3 \alpha_1 \alpha_2 - \alpha_1 a_6 - \alpha_2 a_4 - \alpha_3 a_5]} . \end{aligned} \quad (31)$$

We now consider the special case that two of the quantities  $a_4, a_5$  and  $a_6$  are zero, while the third one is put equal to  $r$ . This can be done in three different ways. If we further perform a differentiation in (31) with respect to the mass that is equal to  $r$ , we get three integrals, one of which is given by

$$J_3 = \iiint_0^1 \frac{d\alpha_1 d\alpha_2 d\alpha_3 \delta(1 - \alpha_1 - \alpha_2 - \alpha_3) \alpha_3}{[z_1 \alpha_2 \alpha_3 + z_2 \alpha_1 \alpha_3 + z_3 \alpha_1 \alpha_2 - r \alpha_3]^2} . \quad (32)$$

The other two terms are obtained after obvious permutations. The integration over the variables  $\alpha$  in (32) is elementary and straight forward. The result is

$$J_3 = - \frac{\log(-rz_3) - \log(r-z_1) - \log(r-z_2)}{(r-z_1)(r-z_2) + rz_3} = -f_3(z, r). \quad (33)$$

The function  $f_3(z, r)$  in (33) is the same as the function  $f_3$  defined in Eq. (27a). The other functions  $f_i(z, r)$  in (27a) are obtained from (31) for the other choices of the relation between  $r$  and the masses  $a_4$ ,  $a_5$  and  $a_6$ . In this way we see that the Hankel transform of the perturbation theory example given here, if differentiated once with respect to the variable  $r$ , can be identified with three of the terms in our representation (27). The corresponding FEYNMAN diagram is shown in Figure 7. We have not been able to find a similar connection between perturbation theory results and the remaining term in our representation.

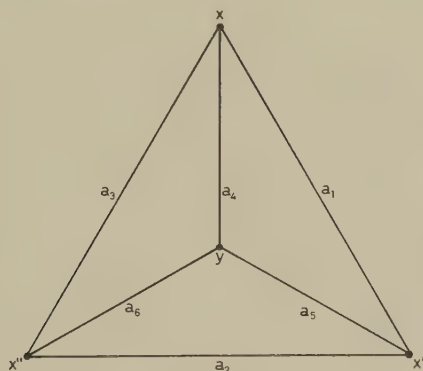


Fig. 7

Feynman diagram corresponding to Eq. (30) and related to three of the terms in the representation (27)

### References

- 1) G. KÄLLÉN and A. WIGHTMAN, Mat. Fys. Skr. Dan. Vid. Selsk. 1, No. 6 (1958). This paper, which is referred to as KW below, also contains references to earlier work.
- 2) The reader who is unfamiliar with the theory and the terminology of functions of several complex variables is referred to H. BEHNKE and P. THULLEN, *Ergebn. d. Mathem.* 3, Nr. 3, Berlin 1934, and to S. BOCHNER and W. T. MARTIN, *Several Complex Variables*, Princeton 1948. A short «physicist's summary» of some of these concepts is given in section VI in KW.
- 3) For a derivation of this formula we refer to F. SOMMER, *Mathem. Ann.* 125, 172 (1952). We follow the terminology and notation of this paper.
- 4) This construction was originally done by one of us (G. K.) in collaboration with A. WIGHTMAN in the course of some preliminary investigation of the BERGMAN-



WEIL integral technique to the three fold vacuum expectation value. We want to thank Prof. WIGHTMAN for his kind permission to use these results here.

- 5) This procedure has been suggested to us by Prof. F. SOMMER. We are very much indebted to Prof. SOMMER for this suggestion as well as for a correspondence about the BERGMAN-WEIL integral.
- 6) This new surface is easily shown to give exactly the relevant part of the  $F$  curve in the limit when  $\varepsilon \rightarrow 0$ . It might appear that this distortion could open gaps in the boundary of the domain; however it can be verified that the displaced contour (9) never crosses the real axis of  $z_3$  ( $1 + i\varepsilon$ ) nor the negative real  $z_3$ -axis. The similar property also holds for the corresponding displacements of  $F'_{13}$ ,  $F'_{23}$  and  $\mathfrak{F}$  described below, so that the four displaced surfaces plus the  $z_1$ -cut,  $z_2$ -cut and  $z_3$ -cut define a complete and continuous boundary for a domain of analyticity.
- 7) The Hankel transform for ordinary functions is extensively treated in the mathematical literature, cf. e. g. I. SNEDDON, *Fourier integrals*, New York 1951, esp. pp. 48–70. Formula (23) applied to Lorentz-invariant, tempered distributions which we are also interested in here, has been discussed and justified by L. GÄRDING, *Suppl. Nuovo Cimento* 14, 9 (1959), esp. pp. 45–54.

# Die Normalform einer komplexen Lorentztransformation

von **Res Jost**

E T H, Zürich

*Zusammenfassung.* Zwei komplexe Lorentztransformationen  $A$  und  $B$  heissen äquivalent, falls es zwei reelle Transformationen  $A_1$  und  $A_2$  in  $L_+^\uparrow$  derart gibt, dass  $A = A_1 B A_2$ . Die so definierten Äquivalenzklassen werden durch die Konstruktion einer Normalform für jede Klasse vollständig charakterisiert. Im letzten Paragraphen wird ein Satz bewiesen, der die Verbindung zu den Untersuchungen von BARGMANN, HALL und WIGHTMAN schafft.

## § 1. Einleitung

Die komplexen Lorentztransformationen spielen seit einiger Zeit eine bedeutende Rolle in denjenigen Arbeiten, die sich mit den Grundlagen der quantisierten Feldtheorien befassen<sup>1)</sup>. Für den physikalisch interessanten Fall von vier Dimensionen ist es wohl am einfachsten, zur Analyse der komplexen Lorentzgruppe den bekannten Isomorphismus dieser Gruppe mit dem direkten Produkt von zwei speziellen linearen Gruppen in zwei Dimensionen auszunützen. Doch haftet dieser Methode besonders im Hinblick auf die Verallgemeinerung auf höhere Dimensionen etwas Künstliches an. Wir geben deshalb im folgenden eine Analyse von komplexen Lorentztransformationen, bei der die Dimensionszahl nebensächlich ist. Es ist dabei das Ziel, die Analyse so zu leiten, dass die Verallgemeinerung der Resultate<sup>2)</sup> von V. BARGMANN, D. HALL und A. WIGHTMAN auf allgemeine Dimensionszahlen evident wird. Das wesentliche Hilfsmittel wird in Form eines Satzes formuliert.

Im Hinblick auf diese Anwendung wird überall nur das Skalarprodukt

$$(x, y) = x^0 y^0 - x^1 y^1 - x^2 y^2 - \dots - x^n y^n$$

in Betracht gezogen.

Der Hauptteil der Note besteht darin, für rein imaginäre\*) Lorentztransformationen eine Normalform zu finden. Die zugehörigen Rechnungen unterscheiden sich wenig von denjenigen, die erforderlich sind, um die Normalform einer reellen Lorentztransformation zu gewinnen<sup>3)</sup>. Der Vollständigkeit halber sind sie aber trotzdem wiedergegeben.

\*) Dieser Ausdruck erscheint nicht sehr glücklich, doch fiel es mir schwer, einen besseren zu finden.

Diese Note geht auf eine Anregung von F. J. DYSON und auf eine kritische Bemerkung von V. BARGMANN zurück. Ihnen beiden gilt auch hierfür mein freundschaftlicher Dank.

## § 2. Definitionen

### 1. Metrik

$$(x, \dot{x}) = (x^0)^2 - \sum (x^k)^2 = x^T G x$$

$$G = \begin{pmatrix} 1 & & & & \\ & -1 & & & \\ & & -1 & & \\ & & & \ddots & \\ & 0 & & & -1 \end{pmatrix}$$

### 2. Transponierte einer Matrix: $M^T$

Hermitesche Konjugierte:  $M^*$

Komplex Konjugierte:  $M' = M^{T*}$

### 3. Reelle Lorentztransformation $A: A^{-1} = G A^T G, A' = A$ .

Einskomponente der reellen Lorentzgruppe:  $L_+^\uparrow$ .

$A \in L_+^\uparrow$  hat die Determinante +1 und transformiert den Vorkegel  $V_+ = \{x; x^0 > 0, (x, x) > 0\}$  in sich.

### 4. Komplexe Lorentztransformation $A: A^{-1} = G A^T G$

Einskomponente der komplexen Lorentzgruppe  $L_+(C)$ .

$A \in L_+(C)$  hat die Determinante +1.

### 5. $M \in L_+(C)$ heisst rein imaginär, falls $M' M = 1$ .

### 6. Äquivalenz zweier komplexer Lorentztransformationen: $A \sim B$ , falls es $A_{1,2} \in L_+^\uparrow$ gibt, derart, dass $A = A_1 B A_2$ .

Das Ziel der Untersuchung besteht darin, zu jeder der durch 6. definierten Äquivalenzklassen eine Normalform zu gewinnen. Dazu ist es nötig, zunächst eine Normalform für eine rein imaginäre Lorentztransformation zu suchen.

## § 3. Normalform einer rein imaginären Lorentztransformation

### 1. Die Wurzeln des charakteristischen Polynoms $\chi(\lambda) = \text{Det}(M - \lambda \cdot 1)$ (Eigenwerte)

a) Aus  $\chi(\lambda) = 0$  folgt  $\chi(\lambda^{-1}) = 0$ . Das gilt für eine beliebige Lorentztransformation. Mit  $\lambda$  ist also auch  $\lambda^{-1}$  Eigenwert.

b)  $\chi(\lambda)$  ist ein reelles Polynom, denn

$$\begin{aligned} \chi^*(\lambda) &= \text{Det}(M^* - \lambda \cdot 1) = \text{Det}(M'^T - \lambda \cdot 1) \\ &= \text{Det}((M^{-1})^T - \lambda \cdot 1) = \text{Det}(G(M - \lambda \cdot 1)G) = \chi(\lambda). \end{aligned}$$

Also sind die Eigenwerte von  $M$  entweder reell oder sie treten in konjugiert komplexen Paaren auf.

Im folgenden brauchen wir zwei triviale Lemmata:

*Lemma 1:*

α) Zwei reelle orthogonale Nullvektoren sind linear abhängig.

β) Falls ein komplexer Nullvektor  $x$  auf dem komplex konjugierten  $x'$  orthogonal steht, dann sind  $x$  und  $x'$  linear abhängig.

*Lemma 2:* Sei  $Mx = \lambda x$  und  $My = \mu y$ , dann ist  $(x, y) = \lambda \mu (x, y)$ , also ist entweder  $(x, y) = 0$  oder  $\lambda \mu = 1$ .

c) Falls  $\lambda$  ein komplexer Eigenwert von  $M$  ist, dann ist  $\lambda^* = \lambda^{-1}$  also  $|\lambda| = 1$ .

*Beweis:* Aus  $Mx = \lambda x$  folgt  $Mx' = \lambda^{*-1}x'$ . Nach Lemma 2  $(x, x) = (x, x') = 0$  also sind  $x$  und  $x'$  nach Lemma 1 linear abhängig und daher  $\lambda^{*-1} = \lambda$ .

Ausserdem kann  $x$  jetzt reell gewählt werden und desgleichen  $y$ , der Eigenvektor zu  $\lambda^{-1}$ . Es gilt  $(x, x) = (y, y) = 0$ , also ist  $(x, y) \neq 0$  und bei passender Normierung  $(x, y) = 1$ .

Dann sind die Vektoren  $\xi = 2^{-\frac{1}{2}}(x + y)$  und  $\eta = 2^{-\frac{1}{2}}(x - y)$  orthogonal und normiert:  $(\xi, \xi) = (\eta, \eta) = 1$ . Es kann also nur einen komplexen Eigenwert geben, und der durch  $(M - \lambda 1)$  annihilierter Raum ist linear.

## 2. Das Auftreten von nicht linearen Elementarteilern

a) Zu einem komplexen Eigenwert  $\lambda^* \neq \lambda$  gibt es nur lineare Elementarteiler.

*Beweis:* Sei

$$Mx = \lambda x \quad \text{und} \quad My = i\lambda x + \lambda y.$$

$x$  kann reell gewählt werden gemäss 1c. Dann folgt

$$My' = i\lambda x + \lambda y'.$$

woraus  $M(y' - y) = \lambda(y' - y)$ . Es kann also auch  $y$  (das nur modulo  $x$  definiert ist) als reell vorausgesetzt werden. Nun folgt weiter neben  $(x, x) = 0$  auch  $(Mx, My) = \lambda^2(x, y)$ , also  $(x, y) = 0$  und  $(My, My) = \lambda^2(y, y)$ , also auch  $(y, y) = 0$ . Das ist nach Lemma 1 ein Widerspruch.

*Folgerung:* Es kann höchstens ein Paar von einfachen, konjugiert komplexen Eigenwerten geben.

b) Zu einem reellen Eigenwert  $\lambda \neq \pm 1$  gibt es nur lineare Elementarteiler.

*Beweis:* Sei  $\lambda^{-1} \neq \lambda = \lambda^*$  und

$$Mx = \lambda x \quad My = x + \lambda y$$

$$Mx' = \lambda^{-1}x' \quad My' = -\lambda^{-2}x' + \lambda^{-1}y'.$$

Daraus  $(x, x) = 0$ ,  $(Mx', My) = \lambda^{-1}(x, x') + (x', y)$ , also auch  $(x, x') = 0$  und daher  $x$  und  $x'$  linear abhängig, was nur für  $\lambda = \lambda^{-1}$  möglich ist.

c) Es gibt höchstens *einen* nichtlinearen Elementarteiler, der entweder zum Eigenwert  $\lambda = +1$  oder  $\lambda = -1$  gehört und nur auftritt, falls alle Eigenwerte reell sind. Ein solcher Elementarteiler ist 3. Grades.

*Beweis:* Sei  $\lambda^2 = 1$  und

$$Mx = \lambda x \quad My = i\lambda x + \lambda y,$$

dann ist

$$Mx' = \lambda x' \quad My' = i\lambda x' + \lambda y'.$$

Nach b) ist  $(x, x') = 0$ . Ausserdem  $(Mx, My) = i(x, x) + (x, y)$ , also  $(x, x) = 0$ ;  $x$  und  $x'$  sind linear abhängig. Daher kann  $x$  und ebenso  $y$  als reell vorausgesetzt werden. Schliesslich gilt  $(My, My) = 2i(x, y) + (y, y)$ , also ist auch  $(x, y) = 0$ . Nun sei  $x_1$  ein weiterer Eigenvektor  $Mx_1 = \mu x_1$ , dann folgt, falls  $\mu = \lambda$  ist, wie oben aus  $(Mx_1, My) = i(x_1, x) + (x, y)$  auch  $(x_1, x) = 0$ . Das gilt aber nach Lemma 2 auch für  $\mu \neq \lambda$ .

Alle Eigenvektoren und  $y$  sind daher orthogonal zum Nullvektor  $x$ , spannen also mit  $y$  zusammen nicht den ganzen Raum auf. Der Elementarteiler muss also mindestens 3. Grades sein:

$$Mz = -\frac{1}{2}\lambda x + i\lambda y + \lambda z, \quad Mz' = -\frac{1}{2}\lambda x + i\lambda y + \lambda z'.$$

$z$  kann wieder reell vorausgesetzt werden.

Es ist  $(x, x) = 0$ ,  $(x, y) = 0$  und  $(x, z) + (y, y) = 0$ . Ein Elementarteiler 4. Grades aber kann nicht vorkommen, denn aus

$$Mw = -\frac{1}{2}\lambda y + i\lambda z + \lambda w, \quad Mw' = -\frac{1}{2}\lambda y + i\lambda z + \lambda w'$$

folgt  $(Mx, Mw) = i(x, z) + (x, w)$ , also  $(x, z) = 0$ , und daraus nach oben  $(y, y) = 0$ , was mit  $(x, x) = (x, y) = 0$  unverträglich ist.

Oben wurde darauf hingewiesen, dass alle übrigen Eigenvektoren auf  $x$  orthogonal sind. Sie spannen also einen rein raumartigen Raum auf. Nach 1c kann daher in diesem Fall kein komplexer Eigenwert vorhanden sein.

### 3. Die Normalform für $M$

a) Es tritt ein Paar komplexer Eigenwerte auf:  $\lambda \neq \lambda^*$ . Man führt im Raum zu  $(\lambda, \lambda^*)$  die Vektoren  $\xi$  und  $\eta$  aus 1c als Basis ein und setzt  $\lambda = e^{i\varphi}$ , dann lautet  $M$  in diesem Raum

$$\begin{pmatrix} \cos \varphi & i \sin \varphi \\ i \sin \varphi & \cos \varphi \end{pmatrix} = K_{\varphi}.$$

Im übrigen hat man nur reelle Eigenwerte und keine höheren Elementarteiler. Sei  $\mu \neq \pm 1$  ein Eigenwert zum Eigenvektor  $x$ , dann gehört  $\mu^{-1}$  zu  $x'$ . Im Raum zu  $(\mu, \mu^{-1})$  führt man die reellen Vektoren



$$\xi = 2^{-\frac{1}{2}}(x + x'), \eta = -i \cdot 2^{-\frac{1}{2}}(x - x')$$

ein. Dann wird

$$(\xi, \xi) = (\eta, \eta) = (x, x') \text{ und } (\xi, \eta) = 0,$$

also muss bei passender Normierung  $(\xi, \xi) = (\eta, \eta) = -1$  sein. Schliesslich setze man  $\mu = \pm e^x$  und findet im Raum zu  $(\mu, \mu^{-1})$  für  $M$  die Normalform

$$\pm \begin{pmatrix} Ch\chi & iSh\chi \\ -iSh\chi & Ch\chi \end{pmatrix} = \pm L_\chi.$$

Als Normalform für  $M$  erhält man jetzt

$$M_0 = \begin{pmatrix} K_\varphi & & & & \\ & \pm L_{\chi_1} & & & \\ & & \ddots & & \\ & & & \pm L_{\chi_k} & \\ & & & & \pm 1 & \ddots \\ & & & & & \ddots & \pm 1 \end{pmatrix}. \quad (a)$$

b) Es tritt kein komplexer Eigenwert und auch kein nichtlinearer Elementarteiler auf. In diesem Fall ist in der vorstehenden Normalform  $K_\varphi$  durch  $\pm 1$  zu ersetzen (b).

c) Es treten keine komplexen Eigenwerte auf, aber es gibt einen kubischen Elementarteiler. Mit einer kleinen Modifikation liefert dann 2c) drei reelle Vektoren  $x, y, z$  derart, dass für  $\lambda = +1$  oder  $\lambda = -1$  gilt

$$Mx = \lambda x, \quad My = \lambda(i\tau x + y), \quad Mz = \lambda(-\frac{1}{2}\tau^2 x + i\tau y + z),$$

mit reellem  $\tau \neq 0$ . Aus diesen Gleichungen folgt weiter  $(x, x) = (x, y) = (y, z) = 0$ ,  $(x, z) + (y, y) = 0$ . Ausserdem sind  $y$  und  $z$  modulo  $x$  bestimmt. Es ist daher immer möglich,  $(y, y) = -1$  und  $(z, z) = +1$  anzunehmen. Im Koordinatensystem mit der Basis  $z, x - z, y$  lautet  $M$ , bezogen auf unsern Unterraum,

$$\lambda \begin{pmatrix} 1 - \frac{1}{2}\tau^2 & \frac{1}{2}\tau^2 & i\tau \\ -\frac{1}{2}\tau^2 & 1 + \frac{1}{2}\tau^2 & i\tau \\ i\tau & -i\tau & 1 \end{pmatrix} = \lambda \tilde{K}_\tau,$$

die Normalform also

$$M_0 = \begin{pmatrix} \pm \tilde{K}_\tau & & & & \\ & \pm L_{\chi_1} & & & \\ & & \ddots & & \\ & & & \pm L_{\chi_k} & \\ & & & & \pm 1 & \ddots \\ & & & & & \ddots & \pm 1 \end{pmatrix} \quad (c).$$

$$M_0 = \begin{pmatrix} 1 & & & \\ & L_{\chi_1} & & \\ & & \ddots & \\ & & & L_{\chi_k} \end{pmatrix} \quad (b_1)$$

auftreten.

Damit ist die gesuchte Normalform gefunden. Der Zusammenhang mit der Normalform einer reellen Lorentztransformation leuchtet unmittelbar ein.

*Satz:* Jede rein imaginäre Lorentztransformation  $M$  lässt sich durch ein  $A \in L_+^\uparrow$  gemäss  $A^{-1} M A$  auf eine der drei Normalformen (a), (b) oder (c) transformieren.

#### § 4. Die Normalform einer komplexen Lorentztransformation

Nun sei  $A$  eine komplexe Lorentztransformation,  $A \in L_+(c)$ . Wir bilden aus  $A$  die rein imaginäre Lorentztransformation

$$M = A'^{-1} A = GA^* GA = GR.$$

Offenbar ist  $R^* = R$  und die hermitesche Form  $x^* R x$  hat den Trägheitsindex von  $G$ . Bei einer reellen Lorentztransformation  $A$  transformiert sich  $R$  gemäss  $A^* R A$ . Der Trägheitsindex von  $R$  bleibt also erhalten. Nun sei  $M_0$  die Normalform von  $M$ :

$$M_0 = A^{-1} M A, \quad A \in L_+^\uparrow,$$

$$R_0 = G M_0 = A^* R A.$$

Um die möglichen  $M_0$  zu bestimmen, haben wir aus den Normalformen des vorigen Abschnittes diejenigen auszuwählen, für die  $R_0$  den richtigen Trägheitsindex hat. Für die Trägheitsindices der verschiedenen Kästchen ergibt sich dabei:

$$K_\varphi \rightarrow \begin{pmatrix} \cos \varphi & i \sin \varphi \\ -i \sin \varphi & -\cos \varphi \end{pmatrix} \quad \text{mit dem Trägheitsindex } (+, -),$$

$$L_\chi \rightarrow \begin{pmatrix} -Ch\chi & -iSh\chi \\ iSh\chi & -Ch\chi \end{pmatrix} \quad \text{mit dem Trägheitsindex } (-, -),$$

$$\pm 1 \rightarrow \mp 1 \quad \text{mit dem Trägheitsindex } \mp.$$

Im Fall a) kommt daher nur in Frage

$$M_0 = \begin{pmatrix} K_\varphi & & & \\ & L_{\chi_1} & & \\ & & \ddots & \\ & & & L_{\chi_k} \end{pmatrix} \quad (a_1),$$

wobei die 1 in der Hauptdiagonalen nur für ungerade Dimensionszahl auftritt, was durch ① angedeutet ist.

Der Fall (b) liefert bei gerader Dimensionszahl nur Spezialfälle des Falles (a) mit  $\varphi = 0$  oder  $\varphi = \pi$ . Bei ungerader Dimensionszahl aber kann als neuer Fall

Schliesslich ist noch der Trägheitsindex aus  $\tilde{K}_\tau$  anzugeben. Dafür findet man  $(1, -1, -1)$ , so dass die zugehörige Normalform lautet

$$M_0 = \begin{pmatrix} \tilde{K}_\tau & & & \\ & L_{\chi_1} & & \\ & & \ddots & \\ & & & L_{\chi_k} \\ & & & & \boxed{1} \end{pmatrix} (c_1),$$

wobei  $\boxed{1}$  diesmal nur bei gerader Dimensionszahl auftritt.

In jedem Fall kann man aus  $M_0$  die Quadratwurzel ausziehen und erhält *wieder eine rein imaginäre Lorentztransformation derselben Form*. Dies ist eine Folge der Gleichungen

$$\sqrt{K_\varphi} = K_{\varphi/2}, \quad \sqrt{L_\chi} = L_{\chi/2}, \quad \sqrt{\tilde{K}_\tau} = \tilde{K}_{\tau/2}.$$

Setzt man  $N = \sqrt{M_0}$ , dann hat man simultan  $N' N = 1$  und  $N^{-1} = G N^T G$ . Es gilt also mit  $A_0 = A^{-1} A A$  die Gleichung  $A_0'^{-1} A_0 = N^2$  oder  $N^{-1} A_0'^{-1} A_0 N' = 1$ , woraus  $(A_0' N)^{-1} (A_0 N') = 1$ . Also ist  $A_0 N' = A_0' N = A_1$  eine reelle Lorentztransformation der Determinanten  $+1$ , und wir haben schliesslich

$$A = A A_1 N A^{-1}.$$

Hier sind noch zwei Fälle zu unterscheiden: entweder ist  $A_1 \in L_+^\uparrow$ , dann ist unsere Reduktion durchgeführt.  $A$  ist dann äquivalent zu einer der Formen  $(a_1)$ ,  $(b_1)$  oder  $(c_1)$ , oder es ist  $A_1 \notin L_+^\uparrow$ , dann hat man  $A_1$  von rechts und  $N$  von links noch mit einer passenden Spiegelung  $P$  zu multiplizieren. Als solche wählt man etwa im Fall  $(a_1)$  die Multiplikation der zwei ersten Zeilen mit dem Faktor  $-1$ , was der Substitution von  $K_\varphi$  durch  $K_{\varphi+\pi}$  entspricht. Im Fall  $(c_1)$  und bei gerader Dimensionszahl kann man  $N$  durch  $-N$  ersetzen. Die so entstehenden Normalformen sind rein imaginär.

Dies ist nicht notwendig erreichbar für  $A_1 \notin L_+^\uparrow$ , ungerade Dimensionszahl und die Fälle  $(b_1)$  und  $(c_1)$ , wo man die folgenden Normalformen wählen kann:

$$A \sim \begin{pmatrix} -1 & & & \\ & L_{\chi_1}^- & & \\ & & L_{\chi_2} & \\ & & & \ddots \\ & & & & L_{\chi_k} \end{pmatrix} \text{ ungerade Dimension } A_1 \notin L_+^\uparrow$$

oder

$$A \sim \begin{pmatrix} \tilde{K}_\tau^- & & \\ & L_{\chi_1} & \\ & & \ddots \\ & & & L_{\chi_k} \end{pmatrix} \text{ ungerade Dimension } A_1 \notin L_+^\uparrow,$$

wobei

$$L_\chi^- = \begin{pmatrix} -1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} L_\chi$$

und

$$\tilde{K}_\tau^- = \begin{pmatrix} -1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \tilde{K}_\tau$$

gesetzt ist.

### § 5. Eine Anwendung

Der folgende Satz bildet das eigentliche Hilfsmittel zum Beweis des ersten Lemmas in der Arbeit von D. HALL und A. WIGHTMAN<sup>2)</sup>.

*Satz:* Es sei  $\zeta = \xi + i\eta$  und  $\eta \in V_+$ . Weiter sei

$$A = \begin{pmatrix} K_\varphi & & \\ & L_{\chi_1} & \\ & & \ddots \\ & & & L_{\chi_k} \end{pmatrix}, |\varphi| < \pi$$

und  $\zeta(\varphi, \chi_1, \dots, \chi_k) = A(\varphi, \chi_1, \dots, \chi_k) \zeta = \xi(\varphi, \chi) + i\eta(\varphi, \chi)$ .

Falls nun  $\eta(\varphi, \chi_1, \dots, \chi_k) \in V_+$ , dann ist auch  $\eta(t\varphi, t\chi_1, \dots, t\chi_k) \in V_+$  für  $0 \leq t \leq 1$ .

*Beweis:* Es wird

$$\eta^0(\varphi) = \eta^0 \cos \varphi + \xi^1 \sin \varphi > 0$$

und

$$(\eta(\varphi, \chi), \eta(\varphi, \chi)) = A(\varphi) - \sum_n B_n(\chi_n) > 0$$

mit

$$A(\varphi) = (\eta^0 \cos \varphi + \xi^1 \sin \varphi)^2 - (\eta^1 \cos \varphi + \xi^0 \sin \varphi)^2$$

$$B_n(\chi_n) = (\eta^{2n} Ch \chi_n + \xi^{2n+1} Sh \chi_n)^2 + (\eta^{2n+1} Ch \chi_n - \xi^{2n} Sh \chi_n)^2.$$

Diejenigen Werte von  $\varphi$ , für welche sowohl  $\eta^0(\varphi) > 0$  als auch  $A(\varphi) > 0$  sind, bilden offenbar in  $|\varphi| < \pi$  ein Intervall, dessen Länge kleiner ist als

$\pi$  und das  $\varphi = 0$  enthält. Der Mittelpunkt dieses Intervalls sei  $\varphi_0$ . Es ist  $|\varphi_0| < \pi/2$  und

$$A(\varphi) = \alpha^2 \cos^2(\varphi - \varphi_0) - \beta^2 \sin^2(\varphi - \varphi_0),$$

wobei auch  $|\varphi - \varphi_0| < \pi/2$  ist.

Analog lässt sich auch  $B_n(\chi_n)$  auf Diagonalform transformieren (abgesehen von Ausnahmefällen, die aber durch ein Stetigkeitsargument erledigt werden können):

$$B_n(\chi_n) = \alpha_n^2 Ch^2(\chi_n - \chi_n^0) + \beta_n^2 Sh^2(\chi_n - \chi_n^0).$$

Es ist also

$$(\alpha^2 + \beta^2) \cos^2(\varphi - \varphi_0) > \beta^2 + \sum \alpha_n^2 + \sum (\alpha_n^2 + \beta_n^2) Sh^2(\chi_n - \chi_n^0)$$

oder:

$$F(t) = (\alpha^2 + \beta^2)^{\frac{1}{2}} \cos(t\varphi - \varphi_0) - \sqrt{a^2 + \sum b_n^2 Sh^2(t\chi_n - \chi_n^0)}$$

ist für  $t = 0$  und  $t = 1$  (wegen  $|\varphi_0| < \pi/2$  und  $|\varphi - \varphi_0| < \pi/2$ ) positiv. Dabei wurde

$$a^2 = \beta^2 + \sum \alpha_n^2 \quad \text{und} \quad b_n^2 = \alpha_n^2 + \beta_n^2$$

gesetzt.

Nun ist aber  $F(t)$  konvex, solange  $\cos(t\varphi - \varphi_0) > 0$  ist, wie sich durch Ausrechnen der zweiten Ableitung ergibt:

$$F''(t) = -(\alpha^2 + \beta^2)^{\frac{1}{2}} \varphi^2 \cos(t\varphi - \varphi_0) - G(t)$$

$$G(t) = [a^2 + \sum b_n^2 Sh^2(t\chi_n - \chi_n^0)]^{-3/2} G_1(t)$$

und

$$\begin{aligned} G_1(t) &= a^2 \sum \chi_n^2 b_n^2 (C_n^2 + S_n^2) \\ &+ (\sum b_n^2 S_n^2) (\sum \chi_n^2 b_n^2 S_n^2) \\ &+ \{(\sum b_n^2 S_n^2) (\sum \chi_n^2 b_n^2 C_n^2) - (\sum b_n^2 \chi_n S_n C_n)^2\}, \end{aligned}$$

welches offenbar nach der Schwarzschen Ungleichung positiv ist. Als Abkürzung wurde dabei  $S_n = Sh(t\chi_n - \chi_n^0)$  und  $C_n = Ch(t\chi_n - \chi_n^0)$  verwendet.

Also ist für  $0 \leq t \leq 1$

$$F(t) \geq (1-t) F(0) + t F(1) \geq \text{Min}(F(0), F(1)),$$

andererseits aber für dasselbe  $t$ -Intervall

$$(\eta(t\varphi, t\chi), \eta(t\varphi, t\chi)) \geq [F(t)]^2,$$

wodurch der Satz bewiesen ist.



**Literaturverzeichnis**

- <sup>1)</sup> A. WIGHTMAN, Phys. Rev. *101*, 860 (1956). – D. HALL und A. WIGHTMAN, Mat-fys. Medd. *31*, No. 5 (1957). – G. KALLÉN und A. WIGHTMAN, Mat-fys. Skrifter *1*, 6 (1958). – R. JOST, Helv. Phys. Acta *30*, 409 (1957). – N. BURGOYNE, Nuovo Cimento *8*, 607 (1958). – R. JOST, *W. Pauli Memorial Volume*, Interscience Press 1960.
- <sup>2)</sup> D. HALL und A. WIGHTMAN, loc. cit.<sup>1)</sup>.
- <sup>3)</sup> E. WIGNER, Annals of Math. *40*, 149 (1939), p. 159 ff.

# The S-Matrix in the Non-local Field Theory of Arnous and Heitler

by L. O'Raifeartaigh

Institute for Theoretical Physics, University of Zürich.\*)

*Summary.* The general non-local field theory of ARNOUS and HEITLER is considered for a specially chosen  $c$ -number form factor. A technique for evaluating the  $S$ -matrix is developed and with its help it is proved that the theory is convergent throughout in all orders of perturbation. However, with this form factor strict Lorentz invariance is not maintained but is confined to the first order of perturbation, as some explicit calculations (e. g. the self mass of the electron) show.

## Introduction

In recent years a lot of evidence for a finite size of the elementary particles has been accumulating. The evidence is fairly well-known and we shall not discuss it in detail except to say that (1) the evidence suggests a universal cut-off or 'least length' (the same for all particles, or rather all interactions) of the order of magnitude  $1/M$ , where  $M$  is the mass of the nucleon and that (2) the evidence concerns, among other things, the observability (and therefore finiteness) of certain quantities (e.g. self-masses) which hitherto were often regarded as unobservable, and, because they were infinite according to the usual theory, were renormalized away.

So far, the concept of a finite-sized particle is restricted to, and has been used in field theory, only in the extreme non-relativistic region. The evidence for the finiteness of the self-masses etc., however, if accepted, makes it imperative for this concept to be embodied somehow in the *relativistic* field theories also, which, of course implies a profound modification of these theories.

In other words, the observability of the self-masses, for example, requires that the usual relativistic theory be modified so that it becomes convergent\*\*), and in such a way that the 'extended source' of the particles arises in the non-relativistic limit.

---

\*) On leave of absence from Dublin Institute of Advanced Studies.

\*\*) Of course, there are other reasons too, for demanding convergence, such as the existence of 'ghost'-states.

The question is whether such a convergent theory exists at all in the relativistic region. This question is not trivial. Already a non-local relativistic theory has been proposed (KRISTENSEN, MØLLER 1952<sup>1</sup>)) which in spite of being nonlocal is divergent. In two recent papers (ARNOUS, HEITLER *et al.*, in press<sup>2</sup>)<sup>3</sup>)) which will be referred to below as I and II an alternative approach to this problem has been suggested. In contrast to the non-local theory of KRISTENSEN and MØLLER, where relativistic invariance is assumed from the outset, it is proposed in I and II that the non-local theory be constructed in such a way that the convergence of the theory should be the *primary demand*. In view of the difficulty of reconciling convergence and invariance the relativistic invariance is considered only in the second place. In other words, it is proposed to generalize the idea of the finite source so that it should extend into the relativistic region, retaining the convergence, but not necessarily retaining strict relativistic invariance. The problems to be investigated would then be (a) whether within the framework of the convergent theory strict relativistic invariance could be attained as well, or (b) whether strict relativistic invariance could be sacrificed *without* coming into contradiction with experiment. If any violation of exact relativistic invariance should occur it would of course be restricted to the inside of the source, about which we have no direct knowledge. We may perhaps visualize a situation where the violation of Lorentz-invariance is mild enough not to exhibit itself in the experiments up to the present. Thus this second question must be considered in spite of the fact that in the local theory, the success of the renormalization procedure seems to depend ultimately on an appeal to strict relativistic invariance.

A general framework for discussing these questions has been developed in I and II. There, the nonlocality is introduced into the theory by means of a form-factor in that part of the Hamiltonian which describes the interaction of two fields. This form-factor may be either a *c*-number or a *q*-number. Now as we have said, the primary demand should be for convergence. The purpose of the present paper is to establish that, for *c*-number form-factors at any rate, the form-factor can always be chosen so as to ensure convergence in all orders of the perturbation expansion (i.e. so as to ensure convergence of the *S*-matrix). It is shown further that this convergence is compatible with relativistic invariance in the *first* order of perturbation. Thus the theory proposed in I and II is actually the first convergent theory extending into the relativistic region.

But for this success, so far, a certain high price has had to be paid. It turns out, in fact, that (still for *c*-number form-factors) simultaneously with convergence, relativistic invariance in the higher orders of perturbation cannot be attained. This is shown below in detail for a particular

example (self-mass of the electron). However, the deviation from relativistic invariance in this case (i.e. the deviation from the Einstein mass-velocity relation) lies just outside the present range of experiment<sup>4</sup>). It will be of great interest to see whether more accurate experiments will maintain the *exact* validity of the Einstein relation or not. Whether for the more accurately measured effects of quantum-electrodynamics such as the Lamb-shift and the anomalous magnetic moment of the electron, the deviation from relativistic invariance is still outside the experimental range is not yet known. We have actually calculated the anomalous magnetic moment below (also the photon self-energy) but on account of some theoretical ambiguity our results for these are not yet final.

Thus the question (b) above whether strict relativistic invariance can be sacrificed or not, is still open. The question (a) whether strict relativistic invariance can be achieved simultaneously with convergence, is decided in the negative if we restrict ourselves to  $c$ -number form-factors, but is still very open if  $q$ -numbers factors are considered. The possibilities for  $q$ -number factors have hardly been investigated at all as yet, but it is fairly obvious that it will be possible to choose these, also, so as to ensure convergence. Whether, as for the  $c$ -number factors, choosing them in this way will exclude strict relativistic invariance remains to be seen.

For definiteness we have considered in this paper only non-local quantum-electrodynamics, but the convergence proof can easily be extended to cover all the known field-theories, including those which involve derivative coupling—as is pointed out in the text at the appropriate places. In addition to the convergence proof we have also developed in this paper a technique for calculating matrix elements of the S-matrix. It is the non-local analogue of the Feynman-Dyson method. It turns out to be more complicated than in the local case, but it can be used to advantage for the convergence proof and for a number of important and non-trivial calculations—self-mass of the electron, anomalous magnetic moment of the electron, proton-neutron mass-difference, etc.

The paper consists of three sections altogether. In the first section the calculating technique just mentioned is developed. In the second, the proof of convergence is given. In the last section the self-mass of the electron and the magnetic moment are discussed.

### § 1. Form of the S-matrix

In I,  $S(t)$  was defined (in interaction representation) by

$$\left. \begin{aligned} i \frac{\partial S(t)}{\partial t} &= H(t) S(t) \\ S(-\infty) &= 1. \end{aligned} \right\} \quad (1.1)$$

$H_0$ , the free-field Hamiltonian, was the same as in the local theory and the non-locality entered through  $H(t)$  i.e.

$$H(t) = \int d^3x \int d^4(x' x'' x''') \bar{\psi}(x') \gamma^\mu \psi(x'') A_\mu(x''') F(x-x', x-x'', x-x''') \quad (1.2)$$

$$- \int d^3x \int d^4(k' k'' k''') \bar{\psi}(k') \gamma^\mu \psi(k'') A_\mu(k''') f(k', k'', k''') e^{-i(k'-k''-k''')x} \quad (1.3)$$

where  $f$ , the form-factor, and  $\bar{\psi}(k')$  etc. are the Fourier transforms of  $F(x-x', x-x'', x-x''')$ ,  $\bar{\psi}(x')$  etc.  $F$  is the non-local kernel and satisfies, in general, only the necessary normalization condition (I, (4)

$$f(k'', k'', 0) = 1 \quad (1.4)$$

and the Hermiticity condition

$$f(k' k'' k''') = f^*(k'' k' k''') \quad (1.5)$$

A general  $F$  satisfying only (1.4), (1.5) does not produce Lorentz invariance even in the *first* order of perturbation theory. The condition for first order Lorentz-invariance is that the arguments of  $f$  be invariants i.e.

$$f(k', k'', k''') = f(\mathbf{k}' \cdot \mathbf{k}'', \mathbf{k}'' \cdot \mathbf{k}''', \mathbf{k}''' \cdot \mathbf{k}')^*. \quad (1.6)$$

Throughout this paper we shall assume that  $f$  satisfies (1.6). A particularly simple  $F$  (still satisfying (1.6), of course) is

$$\left. \begin{aligned} F(x-x', x-x'', x-x''') &= G(x-x', x-x'') \delta^4(x-x''') \\ f(\mathbf{k}' \cdot \mathbf{k}'', \mathbf{k}'' \cdot \mathbf{k}''', \mathbf{k}''' \cdot \mathbf{k}') &= g(\mathbf{k}' \cdot \mathbf{k}'') \end{aligned} \right\} \quad (1.7)$$

In  $g$  only Fermion momentum variables occur (cf. (1.3)).

Solving (1.1), by iteration, we have as usual for  $t = \infty$

$$S \equiv S(\infty) = 1 + \sum_{m=1}^{\infty} (-i)^m \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \dots \int_{-\infty}^{t_{m-1}} dt_m H(t_1) H(t_2) \dots H(t_m). \quad (1.8)$$

In this section we shall formulate a method of calculating  $S$  analogous to the Feynman-Dyson method. In the next section we shall discuss the convergence of  $S$ . From (1.8)

$$S_{jk}^{(n)} = \langle j | (-i)^n \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \dots dt_n H(t_1) \dots H(t_n) | k \rangle \quad (1.9)$$

Let us try to mould (1.9) into the Feynman-Dyson form. First

$$S_{jk}^{(n)} = \langle j | \frac{(-i)^n}{n!} \int_{-\infty}^{\infty} \dots d^4 y_\alpha \dots P \{H(y_1) \dots H(y_\alpha) \dots H(y_n)\} | k \rangle \quad (1.10)$$

\*  $A$  means 4-vector,  $\vec{A}$  three-vector. The invariants  $\mathbf{k}'^2$ ,  $\mathbf{k}''^2$ ,  $\mathbf{k}'''^2$  are trivial.



where (from (1.3))

$$H(y_\alpha) = \int d^4(k'_\alpha k''_\alpha k'''_\alpha) \bar{\psi}(k'_\alpha) \gamma^\mu \psi(k''_\alpha) A_\mu(k'''_\alpha) f_\alpha(k'_\alpha, k''_\alpha, k'''_\alpha) e^{i(k''_\alpha - k'_\alpha - k'''_\alpha)y_\alpha} \quad (1.11)$$

We are assuming that  $f_\alpha$  satisfies (1.6).

$P$  is the Dyson chronological operator. In contrast to the local case  $P$  is not necessarily Lorentz invariant. This is because here  $P$  operates on the  $y_\alpha$ , not on  $y'_\alpha, y''_\alpha, y'''_\alpha$ , the arguments of  $\bar{\psi}, \psi, A$ . The condition for the Lorentz-invariance of  $P$  is the usual

$$[H(x), H(y)] = 0 \quad \text{for} \quad (x - y)^2 < 0 \quad (1.12)$$

Now all the momentum-space integrals occurring in the calculation of (1.10) come from *contractions*. These occur in the following way. Some  $A_\mu(y'''_\beta)$  (or some  $\bar{\psi}(y'_\beta)$ , or  $\psi(y''_\beta)$ ) creates a virtual particle which is then destroyed by another  $A$  (or  $\bar{\psi}$  or  $\psi$ ),  $A_\mu(y'''_\beta)$  say, standing to the left of  $A(y'''_\beta)$  i.e.  $y^0_\alpha > y^0_\beta$ . (If it is destroyed in  $\langle j |$  there is no contraction, and no integral). Then for  $y^0_\alpha < y^0_\beta$  we get the reverse process and the effect of both processes on  $S^{(n)}_{jk}$  may be written

$$\begin{aligned} y^0_\alpha > y^0_\beta \quad S^{(n)}_{jk} &= \langle j | \int \dots P \dots \langle 0 \text{ photon} | A_\mu(k'''_\alpha) e^{iy_\alpha k'''_\alpha} f_\alpha(\dots k'''_\alpha) \\ &\quad \dots A_\mu(k'''_\beta) e^{iy_\beta k'''_\beta} f_\beta(\dots k'''_\beta) | 0 \text{ photon} \rangle \dots | k \rangle \\ y^0_\alpha < y^0_\beta \quad S^{(n)}_{jk} &= \langle j | \int \dots P \dots \langle 0 \text{ photon} | A_\mu(k'''_\beta) e^{iy_\beta k'''_\beta} f_\beta(\dots k'''_\beta) \\ &\quad \dots A_\mu(k'''_\alpha) e^{iy_\alpha k'''_\alpha} f_\alpha(\dots k'''_\alpha) | 0 \text{ photon} \rangle \dots | k \rangle \end{aligned} \quad (1.13)$$

$P$  is now superfluous for  $y^0_\alpha - y^0_\beta$ , of course. Calculating these expressions in the usual way we get

$$\begin{aligned} y^0_\alpha \leq y^0_\beta \quad S^{(n)}_{jk} &= \langle j | \int \dots P \\ \dots \frac{d^3 k_{\alpha\beta}'''}{\omega_{\alpha\beta}'''} e^{\pm i\omega_{\alpha\beta}'''(y^0_\alpha - y^0_\beta) - i\vec{k}_{\alpha\beta}'''(\vec{y}_\alpha - \vec{y}_\beta)} f_\alpha\left(\dots \frac{\pm \omega_{\alpha\beta}'''}{\vec{k}_{\alpha\beta}'''}\right) f_\beta\left(\dots \frac{\mp \omega_{\alpha\beta}'''}{\vec{k}_{\alpha\beta}'''}\right) \dots | k \rangle \end{aligned} \quad (1.14)$$

where  $\omega_{\alpha\beta}''^2 = \vec{k}_{\alpha\beta}''^2 + m_{\alpha\beta}^2$ ,  $m_{\alpha\beta}$  being the relevant mass (zero in this case, actually, but we leave it standing).

The step which leads to the Feynman-Dyson method is made at this point. In the local theory ( $f_\alpha = f_\beta = 1$ ) the two expressions of (1.14), one for  $y^0_\alpha > y^0_\beta$ , one for  $y^0_\alpha < y^0_\beta$ , can be combined into a *single* expression, valid for *all*  $y^0_\alpha - y^0_\beta$ , i.e.

$$S^{(n)}_{jk} = \langle j | \int \dots P \dots \frac{d^4 k_{\alpha\beta}'''}{k_{\alpha\beta}''^2 - m_{\alpha\beta}^2 - i\varepsilon} e^{ik_{\alpha\beta}'''(y_\alpha - y_\beta)} \dots | k \rangle \quad (1.15)$$

Combining in this way for all contracted variables (Wicks theorem) one arrives at the Feynman-Dyson matrix elements, which can be written down from the corresponding Feynman graphs and which are so much simpler than the 'elementary perturbation theory' expressions, obtained essentially by *not* combining the two parts of (1.14).

We try to carry out the same procedure in the non-local case. We write as Ansatz, in analogy to (1.15)

$$S_{jk}^{(n)} = \langle j | \int \dots P \dots \frac{d^4 k_{\alpha\beta}'''}{k_{\alpha\beta}^2 - m_{\alpha\beta}^2 - i\epsilon} e^{i k_{\alpha\beta}''' (y_\alpha - y_\beta)} G(k_{\alpha\beta}''', \omega_{\alpha\beta}''', \vec{k}_{\alpha\beta}''') \dots | k \rangle \quad (1.16)$$

and determine  $G$  by multiplying (1.16) and (1.14) each by  $e^{-i k_{\alpha\beta} (y_\alpha - y_\beta)}$  and integrating over *all*  $(y_\alpha - y_\beta)$ . We find

$$G(k_{\beta\alpha}^0, \omega_{\alpha\beta}, \vec{k}_{\alpha\beta}) = \frac{1}{2} \left\{ f_\alpha \left( \dots \frac{\omega_{\alpha\beta}}{k_{\alpha\beta}} \right) f_\beta \left( \dots \frac{-\omega_{\alpha\beta}}{k_{\alpha\beta}} \right) + f_\alpha \left( \dots \frac{-\omega_{\alpha\beta}}{k_{\alpha\beta}} \right) f_\beta \left( \dots \frac{+\omega_{\alpha\beta}}{k_{\alpha\beta}} \right) \right\} \\ + \frac{k_{\alpha\beta}^0}{2 \omega_{\alpha\beta}} \left\{ f_\alpha \left( \dots \frac{\omega_{\alpha\beta}}{k_{\alpha\beta}} \right) f_\beta \left( \dots \frac{-\omega}{k} \right) - f_\alpha \left( \dots \frac{-\omega}{k} \right) f_\beta \left( \dots \frac{\omega}{k} \right) \right\} \quad (1.17)$$

Thus, in an obvious notation,

$$S_{jk}^{(n)} = \langle j | \int \dots P \dots \frac{d^4 k_{\alpha\beta}'''}{k_{\alpha\beta}^2 - m_{\alpha\beta}^2 - i\epsilon} e^{i k_{\alpha\beta}''' (y_\alpha - y_\beta)} \left[ \frac{1}{2} \{ f_\alpha^{(+)} f_\beta^{(-)} + f_\alpha^{(-)} f_\beta^{(+)} \} + \frac{k_{\alpha\beta}^0}{2 \omega_{\alpha\beta}} \{ f_\alpha^{(+)} f_\beta^{(-)} - f_\alpha^{(-)} f_\beta^{(+)} \} \right] \quad (1.18)$$

is the non-local analogue of (1.15) and reduces again to (1.15) in the local limit  $f = 1$ . We can regard  $G | k^2 - \mu^2 - i\epsilon$  as a modified propagator replacing the local  $1 | k^2 - \mu^2 - i\epsilon$ . Note that in (1.18) the spacetime integration has not yet been carried out—we have not as yet applied the  $\delta$ -functions which occur for the momentum variables.

It might have been expected that instead of (1.18) we would get

$$S_{jk}^{(n)} = \langle j | \int \dots P \dots \frac{d^4 k_{\alpha\beta}'''}{k_{\alpha\beta}^2 - m_{\alpha\beta}^2 - i\epsilon} e^{i k_{\alpha\beta}''' (y_\alpha - y_\beta)} f_\alpha \left( \frac{k_{\alpha\beta}^0}{k_{\alpha\beta}'''} \right) f_\beta \left( \frac{-k_{\alpha\beta}^0}{k_{\alpha\beta}'''} \right) \dots | k \rangle \quad (1.19)$$

which is Lorentz-invariant for  $f$  satisfying (1.6). Instead, we get (1.18), which is not, generally, invariant for  $n > 1$  (cf. § 3). In a sense it is an advantage not to arrive at (1.19) for  $S_{jk}^{(n)}$  because it is already known that an  $S_{jk}^{(n)}$  of the form (1.19) is not, generally, convergent<sup>5) 6)</sup>. Although (1.19) is not itself the correct expression, it will be useful for formulating a rule for writing down the correct  $S_{jk}^{(n)}$ .

So far we have discussed only a single contraction, and indeed only a Boson contraction. (It is shown below, however, that Fermion contractions lead to similar expressions.) What we want now is the analogue of (1.18) for a number of contractions carried out simultaneously (Wicks theorem). With the help of (1.19) we shall formulate a method for writing it down straight from the corresponding Feynman graph.

We remark first that in (1.19) only *one* factor  $f_\alpha f_\beta$  occurs (in (1.18) there are four) so that the analogue of (1.19) for a number of simultaneous contractions is obtained by writing down the local theory matrix element, multiplying it by the *total* form-factor  $\Phi \equiv \prod_{y=1}^{y=n} f_y$ , (a product of  $n$   $f_y$ 's, each with three momentum variables) and then changing every pair of *contracted* variables  $k_{y_1}''', k_{y_2}'''$  occurring in  $\Phi$  into  $(k_{y_1 y_2}''' \bar{k}_{y_1 y_2}') and  $(-k_{y_1 y_2}''' \bar{k}_{y_1 y_2}')$  respectively.$

Next we remark that for the contraction  $\alpha\beta$  above we can pass from (1.19) to (1.18) by making the transition

$$f_\alpha(\dots \frac{k_0}{k}) f_\beta(\dots \frac{-k_0}{k}) \rightarrow \frac{1}{2} [f_\alpha(\dots \frac{\omega}{k}) f_\beta(\dots \frac{-\omega}{k}) + f_\alpha(\dots \frac{-\omega}{k}) f_\beta(\dots \frac{\omega}{k})] \\ + \frac{k_0}{2\omega} [f_\alpha(\dots \frac{\omega}{k}) f_\beta(\dots \frac{-\omega}{k}) - f_\alpha(\dots \frac{-\omega}{k}) f_\beta(\dots \frac{\omega}{k})] \quad (1.20)$$

The process of making the transition (1.20) we call 'linearizing'  $f_\alpha f_\beta$  with respect to  $k_{\alpha\beta}^0$ , because the right hand side of (1.20) contains  $k_{\alpha\beta}^0$  only linearly. Further, consider the total form-factor  $\Phi = \prod_{y=1}^n f_y$ . As yet we have not integrated over space and time and have therefore not used the  $\delta$ -functions in the momentum-space variables, so that at the present stage  $f_\alpha$  and  $f_\beta$  are the *only*  $f_y$ 's containing  $k_{\alpha\beta}'''$ . Thus the transition (1.19)  $\rightarrow$  (1.18) may be regarded not only as a linearization of  $f_\alpha f_\beta$  with respect to  $k_{\alpha\beta}'''$  but as a linearization of the *total* form-factor with respect to  $k_{\alpha\beta}'''$ . This is true for every contraction, only we must note that it is true only *before* the application of the  $\delta$ -functions.

The general method for writing down the analogue of (1.18) for a number of contractions is then evident: 'write down the local theory matrix element (in momentum space) from the corresponding Feynman graph (but before the use of the  $\delta$ -functions at the corners), multiply *as in* (1.19) by the 'wrong' (non-linearized) total form-factor and then linearize this with respect to *all* contracted variables.' After linearization the  $\delta$ -functions may be used. (The rule must be modified a little for Fermion propagators, see below. An explicit example of the use of this method is given in § 3).

In this way the Feynman-Dyson formalism *can* be retained in the non-local case. But it is only in a somewhat formal sense. The main advantage

of the formalism in the local case is the ease and simplicity it produces in the calculations. Here, a great deal of this advantage is lost, on account of the number of terms obtained after linearization according to the above method ( $4k$  terms, *in general* (not always) where  $k$  = number of contracted variables). So the rule can be applied to advantage only in certain cases (cf. § 3). The number of these cases is, of course, greater when  $F(x - x', x - x'', x - x''') = G(x - x', x - x'') \delta^4(x - x''')$ .

The alternative to using the rule above is to use the two terms of (1.14) *separately*, which is nothing other than using 'elementary perturbation theory'. This is also an unwieldy procedure and in each particular calculation, one has simply the coice of deciding which of the two methods is the less cumbersome.

We complete this section by considering Fermion contractions. Instead of (1.14) we then have

$$\gamma_\alpha^0 > \gamma_\beta^0 S_{jk}^{(n)} = \langle j | \int \dots P \dots \langle 0 \text{ Fermion} | \psi(k_\alpha'') e^{-i g_\alpha k_\alpha''} f_\alpha(k_\alpha'') \dots \bar{\psi}(k_\beta') e^{i g_\beta k_\beta'} f_\beta(k_\beta') \dots | 0 \text{ Fermion} \dots | k \rangle \quad (1.21)$$

with a corresponding term for  $\gamma_\alpha^0 < \gamma_\beta^0$ . These become<sup>7)</sup>

$$\gamma_\alpha^0 \leq \gamma_\beta^0 S_{jk}^{(n)} = \langle j | \int \dots P \dots \frac{d^3 k'_{\alpha\beta}}{\omega_{\alpha\beta}} e^{\pm i \omega'_{\alpha\beta} (y_\alpha^0 - y_\beta^0) - i \vec{k}'_{\alpha\beta} (\vec{y}_\alpha - \vec{y}_\beta)} f_\alpha\left(\frac{\pm \omega'_{\alpha\beta}}{\vec{k}'_{\alpha\beta}}\right) f_\beta\left(\frac{\pm \omega'_{\alpha\beta}}{\vec{k}'_{\alpha\beta}}\right) [\pm \gamma^0 \omega'_{\alpha\beta} - \vec{k} \cdot \vec{\gamma}_{\alpha\beta} + m_{\alpha\beta}] \dots | k \rangle \quad (1.22)$$

In the local case these terms combine into

$$S_{jk}^{(n)} = \langle j | \int \dots P \dots \frac{d^4 k'_{\alpha\beta}}{k_{\alpha\beta}'^2 - m_{\alpha\beta}^2 - i\varepsilon} e^{i k'_{\alpha\beta} (y_\alpha - y_\beta)} [k_{\alpha\beta} \cdot \gamma + m_{\alpha\beta}] \dots | k \rangle \quad (1.23)$$

In the non-local case we make the Ansatz (1.16) as before, and for this contraction it turns out that

$$\begin{aligned} G(k^0, \omega, \vec{k} \dots) &= \frac{1}{2} \{ f_\alpha(\frac{\omega}{\vec{k}}) f_\beta(\frac{\omega}{\vec{k}} \dots) [\gamma^0 \omega - \vec{\gamma} \cdot \vec{k} + m] \\ &\quad + f_\alpha(\frac{-\omega}{\vec{k}}) f_\beta(\frac{-\omega}{\vec{k}} \dots) [-\gamma^0 \omega - \vec{\gamma} \cdot \vec{k} + m] \} \\ &+ \frac{k^0}{2\omega} \{ f_\alpha(\frac{\omega}{\vec{k}}) f_\beta(\frac{\omega}{\vec{k}} \dots) [\gamma^0 \omega - \vec{\gamma} \cdot \vec{k} + m] - f_\alpha(\frac{-\omega}{\vec{k}}) f_\beta(\frac{-\omega}{\vec{k}} \dots) [-\gamma^0 \omega - \vec{\gamma} \cdot \vec{k} + m] \} \end{aligned} \quad (1.24)$$

in other words, what is linearized in this case is not the form factor alone, but the form-factor times  $[\gamma^0 k_0 - \vec{\gamma} \cdot \vec{k} + m]$ . Note that for Fermion propagators the products  $f_\alpha^{(+)} f_\beta^{(+)}$  and  $f_\alpha^{(-)} f_\beta^{(-)}$  occur. For Bosons (cf. 1.20) we had  $f_\alpha^{(+)} f_\beta^{(-)}$  and  $f_\alpha^{(-)} f_\beta^{(+)}$ .

The general method for writing down matrix elements formulated above must therefore be modified to writing the local propagators in the form  $\gamma \cdot \mathbf{k} + m \mid \mathbf{k}^2 - m^2$  (not  $1 \mid \gamma \cdot \mathbf{k} - m$ ) and then linearizing, not the total form-factor, but the total form-factor times the local *numerator* (a product of terms of the type  $\gamma \cdot \mathbf{k} + m$ , here).

This general method of calculation has already been used explicitly in a non-trivial case—the calculation of the neutron-proton mass-difference<sup>8</sup>). Incidentally, the rule ‘linearize the total form-factor times the numerator’ is valid also for derivative couplings.

## § 2. Convergence of the S-Matrix

In this section it will be shown that with a suitable choice of form-factor  $S_{jk}^{(n)}$  can be made finite i.e. the ultra-violet divergences can be removed from the theory. (We shall not be concerned, of course, with the convergence of the expansion  $\sum_1^\infty e^n S_{jk}^{(n)}$ ).

The general method of proof is as follows: As a preliminary it is shown that the integration over the *fourth* component of all the integration variables occurring in  $S_{jk}^{(n)}$  is convergent, independently of the form-factor. Then, in the proof proper, it is shown that the form-factor can be chosen to make the remaining (threedimensional) integrations convergent. This is shown first for the general form-factor  $F(x - x', x - x'', x - x''')$  and then for the case  $F = G(x - x', x - x'') \delta^4(x - x''')$ . In the proof, no claim is made to mathematical rigour, and for simplicity a small finite mass will be assigned to the photon.

We proceed now to the preliminary stage of the proof, i.e. the proof that the fourth component integration converges. According to § 1

$$S_{jk}^{(n)} = \int \text{'local theory expression'} \quad (2.1)$$

$\times$  ‘linearized (form factor  $\times$  numerator)’ where the ‘linearized (form factor  $\times$  numerator)’ is a finite sum of terms of the form\*)

$$W^{(n)} = \prod_{\gamma=1}^n f_{\gamma} \left( \pm \frac{\omega_{\gamma}'}{k_{\gamma}} \pm \frac{\omega_{\gamma}''}{k_{\gamma}} \pm \frac{\omega_{\gamma}'''}{k_{\gamma}} \right) \times [\pm \gamma^0 \omega_{\gamma}' - \vec{\gamma} \cdot \vec{k}_{\gamma}' + m] [\pm \gamma^0 \omega_{\gamma}'' - \vec{\gamma} \cdot \vec{k}_{\gamma}'' + m] \\ \times \left( \frac{k_{\gamma}^{00}}{\omega_{\gamma}'} \right)^{\delta_{\gamma}'} \left( \frac{k_{\gamma}^{00}}{\omega_{\gamma}''} \right)^{\delta_{\gamma}''} \left( \frac{k_{\gamma}^{00}}{\omega_{\gamma}'''} \right)^{\delta_{\gamma}'''} \quad (2.2)$$

with every  $\delta = 0$  or 1. Assuming that  $f$  satisfies (1.6) (first order Lorentz-invariance)  $f_{\gamma}$  will be

$$f_{\gamma}(\omega_{\gamma}', \omega_{\gamma}'' \pm \vec{k}_{\gamma}' \cdot \vec{k}_{\gamma}'', \omega_{\gamma}'' \omega_{\gamma}''' \pm \vec{k}_{\gamma}'' \cdot \vec{k}_{\gamma}''', \omega_{\gamma}' \omega_{\gamma}''' \pm \vec{k}_{\gamma}' \cdot \vec{k}_{\gamma}''') \quad (2.3)$$

\*) Apart from external variables.



We need discuss only the general term (2.2) of the sum. The contribution to  $S_{jk}^{(n)}$  of (2.2) is essentially\*)

$$S_{jk}^{(n)} = \prod_{i=1}^t \int d^4 x \int \frac{d^4 k_i}{k_i^2 - m_i^2 - i\epsilon} e^{i\mathbf{k}_i(\mathbf{x}_\alpha^t - \mathbf{x}_\beta^t)} W^{(n)}(k_i^0, \omega_i, \vec{k}_i \dots) \quad (2.4)$$

where  $F_i$  and  $B_i$  are the numbers of internal Fermion and Boson lines respectively,  $\mathbf{k}_i$  is the variable of any internal contracted line (contracted between the corners  $x_i^\alpha$  and  $x_i^\beta$ ), and  $m_i$  is the mass of the corresponding particle.

The time integrations in (2.4) (represented by  $dx_0$ ) lead to one 'overall  $\delta$ -function' (energy conservation) and  $n-1$  internal  $\delta$ -functions, which reduce the  $B_i + F_i$  independent variables  $k_i^0$  to  $B_i + F_i - n + 1$  variables ( $k_s^0$  say). The remaining  $n-1$  variables ( $k_l^0$  say) become linear functions of the  $k_s^0$  and of the external energies ( $k_e^0$  say). It is shown in appendix A that for each  $k_s^0$ , at least one  $k_l^0$  is a linear function of it.

Now in (2.4) on account of (2.2) the fourth components of the variables appear only in the form

$$K = \prod_{s=1}^{F_i+B_i-n+1} \frac{(k_s^0|\omega_s)^{\delta_s}}{k_s^{02} - \omega_s^2 - i\epsilon_s} \prod_{l=1}^{n-1} \frac{(k_l^0|\omega_l)^{\delta_l}}{k_l^{02} - \omega_l^2 - i\epsilon_l} \quad (2.5)$$

$$\omega^2 = \mathbf{k}^2 + m^2$$

On account of what we have just said, any  $k_s^0$  ( $k_{s_1}^0$  say) occurs linearly in at least one of the  $k_l^0$ . As a result, for  $|k_{s_1}^0| \rightarrow \infty$ ,  $K$  behaves like  $1/|k_{s_1}^0|^m$ ,  $m \geq 2$  and it is easy to see from (2.5) that this is true no matter how the other  $k_s^0$  vary (even if they, too, tend to  $\infty$ ). In other words,

$$K \rightarrow 1/|k_s^0|^m \quad m \geq 2 \quad |k_s^0| \rightarrow \infty \quad \text{uniformly} \quad (2.6)$$

But (2.6) is a sufficient condition for the convergence of the fourth component integration, so that the preliminary proof is now complete. Note that no use has been made of the explicit form of the form-factor in deriving (2.6).

We proceed now to the proof proper, the proof of the convergence of the remaining (three dimensional) integrations for suitable choices of the form-factor. Let us consider the fourth component integration in (2.4) as already carried out (by the method of residues). The remaining integrand is a sum of terms consisting of

- (a) an algebraic function of the variables  $\vec{k}_i$  and  $\omega_i$  coming from (2.5) and the  $[\pm \gamma^0 \omega' - \vec{y} \cdot \vec{k}' + m]$   $[\pm \gamma^0 \omega'' - \vec{y} \cdot \vec{k}'' + m]$  part of  $W^{(n)}$  in (2.2)

\*) Apart from external variables.

(b)  $n - 1$   $\delta^3$ -functions in the  $\vec{k}_i$  (and external momenta) coming from the  $d^3x$  integration;

(c) the  $\prod_{\gamma=1}^n f_{\gamma}$  part of  $W^{(n)}$  in (2.2).

This means that, apart from  $\prod_{\gamma=1}^n f_{\gamma}$ , the integrals can diverge at worst algebraically. Our task is to show that  $f_{\gamma}$  can be chosen so as to prevent this algebraic divergence.

Consider first the case  $F = F(x - x', x - x'', x - x''')$ . In this case we shall retain all the  $B_i + F_i$  variables  $\vec{k}_i$  i.e. we shall not use the  $n - 1$   $\delta^3$ -functions in the integrand. If now for each of the variables we can show

(1) that it occurs in at least one of the form factors  $f_{\gamma}$ ;

(2) that one of the three arguments of this  $f_{\gamma}$  (which are in any case positive indefinite,  $\omega' \omega'' \pm \vec{k}' \cdot \vec{k}'' \geq 0$ ) behaves like  $\vec{k}_i^m$   $m > 0$  for  $\vec{k}_i$  large i.e. increases monotonically with some power of  $\vec{k}_i$ , then it is easy to see that  $f$  can be chosen to ensure convergence. We need only choose  $f = f(a, b, c)$  to be a function of its arguments  $a, b, c$  such that it decreases faster than any power of  $a, b, c$  for large  $a, b, c$  (e. g.  $f = e^{-\frac{a^2 + b^2 + c^2}{\lambda^2}}$ ) and then  $\prod_{\gamma=1}^n f_{\gamma}$  will decrease faster than any power of any  $\vec{k}_i$  for large  $\vec{k}_i$ . Our task reduces therefore to showing that the conditions (1) and (2) hold for each  $\vec{k}_i$ .

Consider first all the variables,  $\vec{k}_i^{\alpha}$  say, whose lines in a Feynman graph meet *external* lines at one corner (at least). The form-factor at this corner contains the argument

$x = a, b$  or  $c =$

$$\sqrt{\vec{k}_i^{\alpha 2} + m_i^2} \sqrt{\vec{k}_e^{\alpha 2} + m_e^2} - |\vec{k}_i^{\alpha}| |\vec{k}_e^{\alpha}| + |\vec{k}_i^{\alpha}| |\vec{k}_e^{\alpha}| (1 \mp \cos \widehat{k_i^{\alpha} k_e^{\alpha}}) \quad (2.7)$$

where  $\vec{k}_e^{\alpha}$  is the external momentum. Hence for the  $\vec{k}_i^{\alpha}$  condition (1) is satisfied. Assuming, now, that the photon mass is finite ( $m_e \neq 0$ ), (27) will be a monotonically increasing function of  $\vec{k}_i^{\alpha}$  for large  $\vec{k}_i^{\alpha}$  (since even when  $\cos \widehat{k_i^{\alpha} k_e^{\alpha}} = \pm 1$ ,  $\sqrt{\vec{k}_e^{\alpha 2} + m_e^2} \neq |\vec{k}_e^{\alpha}|$ ). So condition (2) is satisfied. Hence for the  $\vec{k}_i^{\alpha}$  the integration can certainly be made convergent.

Now comes the crucial point. Because the integrations over the  $\vec{k}_i^{\alpha}$  are convergent, we can regard the  $\vec{k}_i^{\alpha}$  as *finite* (cut-off at some finite value determined by the cut-off parameter in  $f$ ,  $\lambda$  say, or better still, we can make a small error by summarily cutting them off at some finite value higher than that determined by  $\lambda$ ). Then the  $\vec{k}_i^{\alpha}$  will also satisfy  $\sqrt{\vec{k}_i^{\alpha 2} + m_i^2} \neq |\vec{k}_i^{\alpha}|$  and if we consider the variables,  $\vec{k}_i^{\beta}$  say, whose lines meet the  $\vec{k}_i^{\alpha}$

lines at one corner (at least) then, in exactly the same way we can deduce that the integral over the  $\vec{k}_i^\beta$  can be made convergent. Repetition of this process shows that the integration over all the variables  $\vec{k}_i$  can be made convergent, for if after a certain number of steps, there remain only variables whose lines do not meet at a corner either the lines already considered, or external lines, then the remaining lines form the graph of a vacuum effect, which should be neglected anyway. This completes the proof for  $F = F(x - x', x - x'', x - x''')$ . The method of producing convergence just outlined has already been used explicitly in a non-trivial case, the graphs of Figure 1 b, e, c, which occur in the proton-neutron mass-difference calculation<sup>8</sup>).

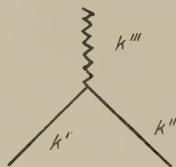


Fig. 1

We now consider the case  $F = G(x - x', x - x'') \delta^4(x - ''')$ . This case is more difficult because of the  $F_i + B_i$  variables only the  $F_i$  Fermion variables appear in the form-factors, e.g. at the corner shown in Figure 1,  $f$  has only the single argument

$$a_{\pm} = \sqrt{\vec{k}'^2 + m^2} \sqrt{\vec{k}''^2 + m^2} \pm \vec{k}' \cdot \vec{k}'' \quad (2.8)$$

However if we use the  $\delta^3$ -function at this corner, we have the extra condition

$$\vec{k}' + \vec{k}''' - \vec{k}'' = 0 \quad (2.8)$$

which either eliminates  $\vec{k}'''$  as a variable, or introduces it into the form-factor at the expense of  $\vec{k}'$  or  $\vec{k}''$ , e.g.

$$a_{\pm} = \sqrt{\vec{k}'^2 + m^2} \sqrt{(\vec{k}' + \vec{k}''')^2 + m^2} \pm \vec{k}' \cdot (\vec{k}' + \vec{k}''') \quad (2.9)$$

In this way all the *independent* variables occur in at least one form-factor. From (2.8) and (2.9) we can see that

- (a) if  $\vec{k}'$  is finite,  $a_{\pm}$  is monotonic in  $\vec{k}''$  or  $\vec{k}'''$  for large  $\vec{k}'$ ,  $\vec{k}'''$ , (whichever is the independent variable)
- (b) if  $\vec{k}''$  is finite,  $a_{\pm}$  is monotonic in  $\vec{k}'$  or  $\vec{k}'''$  for large  $\vec{k}'$ ,  $\vec{k}'''$  (whichever is the independent variable) *but*
- (c) if  $\vec{k}'''$  is finite,  $a_{\pm}$  is *not* monotonic in  $\vec{k}'$  or  $\vec{k}''$  (whichever is the independent variable), although  $a_{\pm}$  is.

Our task is, therefore, to establish the convergence making use of only (a) and (b).

Consider first the Fermion lines of a graph. These occur only in (1) continuous open chains with external variables at either end, or (2) closed loops. For any one of these open chains consider one of the external variables at the end. The momentum of this line is certainly finite (constant). Therefore at the corner where this line splits into two internal lines (Boson + Fermion) (a) and (b) tell us that the integration over whichever of these we regard as independent can be made convergent, just as discussed above for the case  $F(x - x', x - x'', x - x''')$ .

Hence this independent variable (and therefore on account of (2.8) the other dependent one too) can be regarded as finite. Thus the second variable in the Fermion chain is finite. Proceeding to the next corner we can deduce similarly that the third Fermion variable is finite and its integration can be made convergent, and so on. The result is that all the Fermion variables of a chain can be regarded as finite (and the integration over any of them which are to be integrated will be convergent).

For closed loops, on the other hand, it is well known that all the Fermion variables can be expressed in terms of one of them (+ Boson variables). It is shown in appendix B that the integration over this variable can always be made convergent, so that this variable anyway can be regarded as finite. And so, starting with this one we can then proceed around the loop just as we did along the open Fermion line and establish that all the other Fermion variables are finite too.

Thus the integrations over *all* the independent Fermion variables in a graph can be made finite, and *all* the Fermion variables may be regarded as finite. From (a) and (b) it then follows that the same is true for the Boson variables. This completes the proof for the case  $F = G(x - x', x - x'') \delta^4(x - x''')$ .

The primary purpose of this paper has thus been achieved. The non-local theories of I and II, embody within them the possibility of convergence. As considered above, the form-factor  $f$  is not algebraic, but a closer, though much more tedious, examination shows that algebraic functions will also be sufficient to produce convergence. In practice (§ 3) we have found that even a function which tends quite slowly to zero for large values of its arguments will produce convergence. This is hardly surprising in view of the mild nature of the divergence in quantum-electrodynamics. Incidentally, the above proof (including the preliminary proof) for *non*-algebraic  $f$  holds also for derivative couplings.

It might be asked why the present theory produces convergence and the Christensen-Møller theory does not. In terms of form-factors, the answer is that in the present theory only time-like momentum vectors

occur in the form-factor in all orders of perturbation, whereas in the Christensen-Møller theory space-like vectors appear in the higher orders. The divergence of that theory can be traced to these space-like vectors. The space-like vectors do not occur in the present theory on account of the way in which the form-factor is introduced – via the Interaction Hamiltonian in the interaction picture.

### § 3. Some Calculations

In this section we carry out some explicit calculations. The most important of these is the calculation of the self-energy of the electron which we discuss in detail. We discuss also the calculation of the induction tensor and of the magnetic moment of the electron but, on account of the theoretical ambiguity still associated with these, we do not discuss them in detail.

For definiteness we use the (*c*-number) form-factor already proposed by ARNOUS and HEITLER<sup>9)</sup>

$$f^2 = \frac{\lambda^4}{\lambda^4 + (\vec{p}_0 q_0 - \vec{p} \cdot \vec{q})^2 - (\vec{p}_0^2 - \vec{p}^2)(\vec{q}_0^2 - \vec{q}^2)} \quad (3.1)$$

where  $\vec{p}$  and  $\vec{q}$  are the momenta of the two electron lines at a corner of a Feynman graph (corresponding to  $\vec{k}'$ ,  $\vec{k}''$  of Fig. 1) and  $\lambda^4 = m^2 K^2$  where  $m$  is the electron mass and  $K$  is an assumed universal cut-off of the order of magnitude of the nucleon mass. (3.1) is one of the simplest form-factors satisfying (1.4) (1.5) and (1.6). It is sufficiently strong to make the electron self-energy (second order in  $e$ ) convergent. A stronger form-factor may be necessary for general convergence, but, in principle, for the self-energy the effect of (3.1) should be the same as the stronger one.

#### a) Electron Self-energy

As mentioned in II, in the non-local theory it is not quite clear whether the expectation value of the energy is

$$\langle P_4 \rangle \equiv \langle H_0 + H \rangle \text{ or } \langle P_4^0 \rangle = \langle P_4 + \theta \rangle$$

where  $P_4^0$  is a gauge-invariant tensor. (In the local case these expectation values are identical). Here we shall assume that it is  $\langle P_4 \rangle$ . The self-energy of an electron is then (with 'switch-on')

$$\langle t | P_4 | t \rangle - \langle -\infty | H_0 | -\infty \rangle \quad (3.2)$$

for a one-electron state  $| -\infty \rangle$ , when  $| t \rangle$  is the state at a time  $t$  with the interaction fully switched on. Using (II (60))



$$\left. \begin{aligned}
 \text{Self-energy} &= \langle t | P_4 | t \rangle - \langle -\infty | H_0 | -\infty \rangle \\
 &= \langle -\infty | S^{-1}(t)(H_0 + H) S(t) - H_0 | -\infty \rangle \\
 &= \frac{Lt}{T} \frac{i}{2T} \langle -\infty | S(T) - S^*(T) | -\infty \rangle \\
 &= \frac{Lt}{T} \frac{i}{T} \langle -\infty | S(T) - 1 | -\infty \rangle
 \end{aligned} \right\} \quad (3.3)$$

Here  $S(T)$  is the usual  $S$ -matrix, and so we can calculate the self-energy directly from  $S$ . We consider only the order  $e^2$ . The corresponding Feynman diagram is as shown in Figure 2.



Fig. 2

According to § 1, the  $S$ -matrix is obtained by writing down the local theory integrand in momentum space (before the use of the  $\delta$ -functions at corners 1, 2)<sup>10</sup>

$$\frac{e^2}{(2\pi)^3} \frac{m}{E_p} i(-i) (-i)^2 \bar{u}(p) \gamma^\mu \frac{1}{k^2 - \mu^2} \frac{\mathbf{y} \cdot \mathbf{q} + m}{q^2 - m^2} \gamma_\mu u(p) \quad (3.4)$$

multiplying it by the 'wrong' (non-linearized) form-factor (3.1)

$$\frac{e^2}{(2\pi)^3} \frac{m}{E_p} \bar{u}(p) \gamma^\mu \frac{1}{k^2 - \mu^2} \frac{\mathbf{y} \cdot \mathbf{q} + m}{q^2 - m^2} \gamma_\mu u(p) \cdot \frac{\lambda^4}{\lambda^4 + (p_0 q_0 - \vec{p} \cdot \vec{q})^2 - (p_0^2 - \vec{p}^2)(q_0^2 - \vec{q}^2)} \quad (3.5)$$

and then linearizing with respect to  $k_0$  and  $q_0$  (only  $q_0$  actually, in this case). The result is

$$\begin{aligned}
 & \frac{e^2}{(2\pi)^3} \frac{m}{E_p} \frac{1}{k^2 - \mu^2} \frac{1}{q^2 - m^2} \bar{u}(p) \left\{ (\gamma^0 q_0 - \vec{\gamma} \cdot \vec{q} + m) \frac{f(+) + f(-)}{2} \right. \\
 & \quad \left. + \left[ \gamma^0 E + \frac{q_0}{E} (-\vec{\gamma} \cdot \vec{q} + m) \right] \frac{f(+) - f(-)}{2} \right\} u(p), \\
 & E = \sqrt{\vec{q}^2 + m^2} \quad f(\pm) = \frac{\lambda^4}{\lambda^4 + (p_0 E \pm \vec{p} \cdot \vec{q})^2 - m^4} \quad (3.6)
 \end{aligned}$$

The  $\delta$ -functions  $\delta^4(p - k - q)$  then reduce  $\int d^4 k \int d^4 q$  to  $\int d^4 k$ , leaving one overall  $\delta^4(0)$ . The integration with respect to  $k_0$  and the properties of  $\gamma'_s$  then lead to\*)

\*) The  $\bar{u}$ ,  $u$  are normalized so that  $m \bar{u} \gamma_\alpha u = p_\alpha$ .

$$\begin{aligned}
& - \frac{e^2}{(2\pi)^3} \frac{m}{E_p} \frac{2\pi i}{m} \delta^4(0) \int \frac{d^3 k}{2\omega E [(E+\omega)^2 - p_0^2]} \\
& \times \left\{ \begin{aligned} & [-p_0^2 E + (\vec{p}^2 - \vec{p} \cdot \vec{k} + 2m^2)(E+\omega)] [f(+)+f(-)] \\ & + [-p_0 E(E+\omega) + (\vec{p}^2 - \vec{p} \cdot \vec{k} + 2m^2)p_0] [f(+)-f(-)] \end{aligned} \right\} E = \sqrt{(\vec{p} - \vec{k})^2 + m^2} \omega = |\vec{k}| \quad (3.7)
\end{aligned}$$

This expression can also be obtained by an 'elementary perturbation theory' calculation (CH. TERREAUX, unpublished). Using (3.7) in (3.3) we first calculate the self-energy to the order  $\vec{p}^2 |m^2$  for  $\vec{p}^2 \ll m^2$ . The  $\delta^4(0)$  disappears due to the normalization of the kets and the interpretation of  $T$  in (3.3) as  $2\pi \delta(0)$ , and the result of a straightforward but very lengthy calculation is then

electron self-energy ( $\delta E_p$ ) =

$$= \frac{1}{2\pi \cdot 137} \frac{3m^2}{E_p} \left[ \left( \log \frac{2K}{m} - \frac{1}{6} \right) - \frac{2}{3} \frac{\vec{p}^2}{m^2} + 0 \frac{\vec{p}^4}{m^4} + 0 \frac{m^2}{\Lambda^2} \right] \quad (3.8)$$

From the general theory of II, it can be seen that there is no radiative correction to the 3-momentum of an electron so that the self-mass,  $\delta m$ , defined by  $E_p + \delta E_p = \sqrt{\vec{p}^2 + (m + \delta m)^2}$ , is given by

$$\delta m_e \simeq \frac{E_p}{m} \delta E_p \simeq \frac{3m}{2\pi \cdot 137} \left[ \left( \log \left( \frac{2K}{m} \right) - \frac{1}{6} \right) - \frac{2}{3} \frac{\vec{p}^2}{m^2} \right] \quad (3.9)$$

In a Lorentz-invariant theory (3.9) would be independent of  $\vec{p}$ . Thus (3.9) already shows that Lorentz-invariance is violated.

More important, one can see that this will be true for *any*  $c$ -number form-factor (not just (3.1)) as follows. In (3.7) the explicit form of  $f$  has not yet been used, so that (3.7) applies to *any*  $c$ -number form-factor. Now any acceptable choice of form-factor must

- (a) make (3.7) convergent (and must in particular tend to zero for large  $\vec{k}$ ),
  - (b) behave in the same way for  $\vec{p}$  and  $\vec{q}$  (from (1.5), the Hermiticity condition).
- (a) means that

$$\lim_{|\vec{p}| \rightarrow \infty} \int d^3 k \times (\text{Integrand}) = \int d^3 k \times \lim_{|\vec{p}| \rightarrow \infty} (\text{Integrand})$$

and (b) means that

$$\lim_{|\vec{p}| \rightarrow \infty} \int d^3 k \times (\text{Integrand}) \rightarrow 0, \text{ since } \lim_{|\vec{q}| \rightarrow \infty} \int d^3 k \times (\text{Integrand}) = \lim_{|\vec{k}| \rightarrow \infty} \int d^3 k \times (\text{Integrand}) \rightarrow 0.$$

Hence the self-mass will tend to zero with increasing  $|\vec{p}|$ . At high energies the 'bare' mass will be observable. Since the self-mass is not zero for  $\vec{p} = 0$  (rest system of the electron) it will, therefore, be  $\vec{p}$ -dependent, and so Lorentz-invariance will be violated.

That  $\delta m_e \rightarrow 0$  for  $|\vec{p}| \rightarrow \infty$  is satisfactory in that  $\delta m$  is therefore always  $\lesssim 3 m/100$  for all  $\vec{p}$  (the correction for  $\vec{p} = 0$  is approximately  $3 m/100$ ). Hence the deviation from the Einstein mass-velocity relation due to  $\delta m$  will be  $\lesssim 3\%$  (though not necessarily much less for some values of  $\vec{p}$ ). The expansion in (3.9) is valid for  $|\vec{p}|/m \lesssim 1/2$  approximately, and for these values of  $|\vec{p}|/m$  the deviation from the Einstein law predicted by (3.9) is  $\sim 0.05\%$ . At present experimental results are available for  $|\vec{p}|/m \lesssim 1$  ( $v/c \sim 0.7$ ) and these are accurate to about  $0.1\%$ <sup>4</sup>). The above theoretical results are therefore just outside the present range of experiment. We think however that the deviation found with the particular form-factor chosen is too large and that with a more suitable choice of form-factor the deviation might be made considerably smaller. It should be emphasized again, perhaps, that these theoretical results are valid only for  $c$ -number form-factors, and only under the assumption that  $\langle P_4 \rangle$  is the energy.

Note in (3.9) that even when the cut-off  $K$  tends to infinity,  $\delta m_e^2$  does not become invariant, i.e. we do not get the local limit, if by the latter we understand the usual local integrals which tend invariantly to infinity. This is a little surprising, but one must remember that the local integrals are, in fact, ambiguous and their values depend on the method of calculation<sup>11</sup>). That we do not get the local limit in (3.9) means that the  $c$ -number form-factors considered prescribe a method of calculation different from the usual invariant prescriptions (which is already clear from § 1).

We regard the fact that  $\delta m_e^2$  does not become invariant even for large  $K$  as an indication that  $c$ -number form-factors are insufficient, and if any satisfactory form factors exist at all  $q$ -number form-factors will ultimately have to be used to modify the local theory in the proper way.

(b) *The induction tensor and the magnetic moment of the electron:*

Using the methods given in § 1 we have also calculated the induction tensor (the matrix element corresponding to the graph shown in Fig. 3) and the magnetic moment of the electron (given by the usual local theory graphs). The induction tensor is important for calculating the self-energy of the photon<sup>12</sup>) and also because it plays a part in the magnetic moment calculation (Fig. 4). Using a  $c$ -number form-factor, and again assuming that  $\langle P_4 \rangle$  is the energy, we have, so far, not been able to obtain the experimental results for either the photon self-energy (zero) or the magnetic moment. On account of this we refrain from giving the calculation in detail here. It is by no means certain, however, that we shall not in the future be able to obtain the correct (experimental) result, because a number of questions in this connection are still very open.

One question, for example, is the definition of the energy ( $\langle P_4 \rangle$  or  $\langle P_4 + \theta \rangle$ ?). Another is the question of renormalization (mass and charge). A third is whether matters could be improved by using  $q$ -number form-factors. Finally, even among  $c$ -number form-factors, the



Fig. 3



Fig. 4

results (unlike the conclusion drawn for the self-energy) depend on the particular form-factor chosen. It may yet be possible to choose a suitable one. For the two calculations just considered, therefore, our results are by no means conclusive.

### Acknowledgements

I wish to express here my deepest gratitude to Professor W. HEITLER who suggested this problem and under whose kind guidance the work was carried out. I am indebted also to Drs. E. ARNOUS, B. SREDNIWA and CH. TERREAUX, as well as to Professor Y. TAKAHASHI and Mlle. Y. HÉNO for many very useful discussions.

I wish to thank the Dublin Institute for Advanced Studies for the award of a Travelling Studentship. And for financial aid over the past nineteen months I am very much indebted to the Schweizerischer Nationalfonds zur Förderung der wissenschaftlichen Forschung, Kommission für Atomwissenschaft.

### Appendix A

It is required to show that on using the  $n$   $\delta$ -functions at the  $n$  corners of a Feynman graph, so that  $n - 1$  of the variables  $k_l^0$  are expressed in terms of the other  $B_i + F_i - n + 1$  variables  $k_s^0$  (and external momenta  $k_e^0$ ), then for each  $k_s^0$ , at least one  $k_l^0$  is a linear function of it.

The  $n$   $\delta$ -functions at the corners of a graph correspond directly to a set of  $n$  linear equations in the  $k_s^0$ ,  $k_l^0$  and  $k_e^0$  with three terms in each equation

(from the three lines meeting at the relevant corner). Every contracted variable  $k_s^0$  and  $k_l^0$  appears in just two of these equations (the ones corresponding to the corners at each end of the contracted line). Expressing the  $n - 1$   $k_l^0$  in terms of the  $k_s^0$ , means forming linear combinations of these  $n$  equations so that, in one resultant equation only the  $k_e^0$  appear (corresponding to the 'overall'  $\delta$ -function) and in each of the other  $n - 1$  resultant equations one  $k_l^0$  is expressed in terms of the  $k_s^0$  and  $k_e^0$ . Now no  $k_s^0$  appears (by definition) in the one equation for the  $k_e^0$ . Hence each  $k_s^0$  must appear in at least one of the remaining  $n - 1$  equations, for, if not, it could not be determined at all (in terms of all the other variables) from the new set of  $n$  equations, which is impossible, since these are equivalent to the original set, from two of which it *could* be determined. Hence each  $k_s^0$  appears in at least one of the  $n - 1$  equations for the  $k_l^0$  i.e. at least one  $k_l^0$  is a linear function of it.

### Appendix B

It is required to show that if in a closed loop all the Fermion variables are expressed in terms of one of them, the integral over this one can be made convergent.

If  $c$ , the number of corners in the loop, is greater than four ( $c > 4$ ) the integral in question is convergent even in the local theory (power of denominator  $>$  power of numerator in the integrand). In the non-local case this should be, a fortiori, true since any reasonable form-factor will be  $\leq 1$  for all values of the variables in it, even if it does not tend monotonically to zero for large values. Hence we need discuss only  $c \leq 4$  and, indeed, only  $c = 4$  and  $c = 2$ , since  $c = 0, 1$  are not loops at all and  $c = 3$  is taken care of by Furry's theorem (if we invoke  $C$  invariance!).

For  $c = 4$  the integral without the form-factor is almost convergent—it is logarithmically divergent (in the variable  $\vec{k}$  say). And although the arguments of the four form-factors in which  $\vec{k}$  appears do not increase monotonically for large  $\vec{k}$ , this is true only for very special values ( $\cos \widehat{\vec{k} \vec{k}_i} = \pm 1$ ) of the angles  $\widehat{\vec{k} \vec{k}_i}$ , where  $\vec{k}_i$  are the other momenta occurring in these form-factors cf. (2.9)). Now in addition to the integration over  $|\vec{k}|$ , there is an *angle* integration to be carried out, and one can see that the angle integration (which may extend over the special values mentioned) will produce one more power of  $|\vec{k}|$  (at least) in the denominator. On account of the logarithmic nature of the divergence without a form-factor, this extra power of  $|\vec{k}|$  in the denominator will be sufficient to make the integral over  $|\vec{k}|$  convergent. This completes the proof for the case  $c = 4$ .



Admittedly, the argument used is not as rigorous as one might wish, but it seems to us to be correct. The convergent integral

$$\int_0^\infty \frac{dk}{\sqrt{k^2 + \mu^2}} \int_{\theta=0}^{\theta=\pi} \frac{d(\cos \theta)}{[1 + (k^2 + \mu^2) \cos^2 \theta]} \quad (\text{B.1})$$

furnishes a simple example of the idea involved.

We consider finally the case  $c = 2$ . Since in this case there *are* only two corners, at each corner there is either *pair* creation or *pair* destruction. On account of this, in (2.9) only the *positive* sign (i.e.  $a_+$ ) will appear. For finite Boson momentum external to the loop,  $a_+$  is monotonic in the Fermion variable and the integral (which is quadratically divergent in the local case) can be made convergent. (This can easily be verified explicitly.) That we have assumed the Boson momentum external to these loops finite is no restriction because in any given graph for at least one of the  $c = 2$  loops the external Boson momenta must come from some other type of Fermion line (already discussed) or else must be external to the whole graph, for otherwise these  $c = 2$  loops would form a vacuum effect. For this one loop the Boson momenta will be finite. For the remaining  $c = 2$  loops it can then be established in exactly the same way that at least one must have finite external Boson momenta. And so on for all the  $c = 2$  loops. This completes the proof for the case  $c = 2$ , and so for all  $c$ .

### References

- 1) C. MOLLER and P. KRISTENSEN, Kong. Dansk. Vid. Selsk. 27, 7 (1952).
- 2) E. ARNOUS, W. HEITLER, and Y. TAKAHASHI, in press.
- 3) E. ARNOUS, W. HEITLER, and L. O'RAIFEARTAIGH, in press.
- 4) P. S. FARAGO and L. JANOSSY, Nuovo Cim. 5, 1411 (1957).
- 5) M. CHRÉTIEN and R. E. PEIERLS, Proc. Roy. Soc. 223, 468 (1954).
- 6) G. FELDMAN, Proc. Roy. Soc. 223, 112 (1954).
- 7) W. THIRRING, Einführung in die Quantenelektrodynamik (Wien, 1955) p. 40.
- 8) L. O'RAIFEARTAIGH, B. SREDNIAWA, and CH. TERREAUX, Nuovo Cim. 14, 376 (1959).
- 9) E. ARNOUS and W. HEITLER, Nuovo Cim. 11, 443 (1959).
- 10) S. S. SCHWEBER, A. BETHE, and F. DE HOFFMANN, Mesons and Fields, vol. 1 (London 1955), p. 242.
- 11) W. HEITLER, The Quantum Theory of Radiation (Oxford 1954), pp. 313, 314, 324.
- 12) W. HEITLER, l. c., p. 325.

# Space time reflexions, light quanta and heavy bosons

by **H. Fröhlich**

Department of Theoretical Physics, University of Liverpool

*Summary.* A new approach to space time reflexions leads to the introduction of a new angular space in terms of which isobaric spin and related quantities find a simple explanation. On the basis of this new treatment a wave equation is presented which contains as specific cases the Maxwell equations, and the wave equations for  $\pi$ - and  $K$ -mesons. It also predicts the existence of a further particle with mechanical spin 1, with the same isobaric spin properties as  $K$ -mesons but with a larger rest mass.

## 1. Introduction

During a number of years reflexions of various kinds—space, time, charge—have been considered as very important for an understanding of fundamental particles. I feel that the usual treatment of such reflexions is open to serious criticism and I shall show that an appropriate change leads to the introduction of a new angular space in terms of which reflexions can be considered as special cases of continuous transformations. This new space offers an understanding of isobaric spin and related quantities and possibly also of rest mass. The great concern which W. PAULI showed for the treatment of reflexions makes it appropriate to discuss these new possibilities in the present memorial issue.

Consider first as a very simple example a two dimensional space with a coordinate frame  $x, y$  and an irregular triangle in it described by the coordinates of three points  $(x_1, y_1), (x_2, y_2), (x_3, y_3)$ . A rotation replaces these three by three different coordinate pairs  $(x'_k, y'_k)$ . Such a transformation can be interpreted in two different ways as is well known from geometry: (i) the triangle has not been moved, but the frame has been rotated; (ii) the frame remains the same but the triangle has been moved. The first interpretation has no physical (geometric) meaning in terms of the figure for a coordinate system is quite an arbitrary device. The second interpretation, however, has a very definite physical meaning connected with the displacement of the figure in space. To have a closer analogy with field equations we replace the triangles by the three straight lines forming it. They are described by three equations between  $y$  and  $x$ ,  $a_k x + b_k y + c_k = 0$ . Rotation of the coordinate frame by an angle  $\gamma$

(first interpretation) corresponds to a replacement of  $(x, y)$  by  $(x', y')$  say,  $x = x' \cos \gamma - y' \sin \gamma$ ;  $y = x' \sin \gamma + y' \cos \gamma$ . The appropriate motion of the triangle on the other hand corresponds to a replacement of  $a_k, b_k$  by  $a'_k = a_k \cos \gamma + b_k \sin \gamma$ ;  $b'_k = -a_k \sin \gamma + b_k \cos \gamma$  (second interpretation). Carried out together the two transformations leave the form of the equations invariant.

Consider now a reflexion in which each  $x$  coordinate is replaced by its negative. According to the first interpretation we simply have replaced the original frame by another one. Since a frame is an arbitrary device such a change is, of course, always possible. The second, physical, interpretation is, however, no longer possible in a simple manner unless we extend the whole mode of description of the triangle. One such possibility would be the introduction of 'internal' coordinates permitting the triangle to be turned inside out (or rather its two dimensional analogue). Another possibility arises, however, if we permit the triangle to leave the  $x - y$  plane by rotating it around the  $y$ -axis. This requires the introduction of a new dimension, an angle  $\theta$ . The case  $\theta = 0$  then would correspond to the original triangle, and  $\theta = 180^\circ$  to its mirror image. Invariance of the above three equations under reflexion thus involves (i) replacement of the coordinate frame  $(x, y)$  by  $(-x, y)$  and (ii) rotation of the triangle around the  $y$  axis by  $180^\circ$ , leading to the replacement of  $a_k$  by  $-a_k$ .

Interpretation of the angle  $\theta$  in terms of the  $x - y$  plane suggests a formal connection with Pauli spin operators. The cases  $\theta = 0$  and  $\theta = 180^\circ$  describing the original triangle and its reflected one would correspond to the two opposite directions of the spin.  $\theta = 90^\circ$  would then be interpreted as an appropriate mixture of these two cases.

Following the above discussion I feel that point transformations other than mere coordinate replacements should be considered as unphysical and should be replaced by continuous transformations through introduction of new angular coordinates (or of internal coordinates; this will not be done here). To introduce such a new description consider a four vector field  $V_\mu$  (space components  $V_k$ , time component  $V_0$ ) in a Lorentz frame  $x_\mu$  ( $\mu = 1, 2, 3, 4$ ;  $x_4 = i x_0$ ) and introduce three operators  $\Pi_l(\Omega)$ ,  $l = 1, 2, 3$  which depend on angles  $\Omega$  in a way specified below. We then replace the  $V_\mu$  by

$$(V_k, V_0) \rightarrow (\Pi_1 V_k, i \Pi_2 V_0) \quad (1.1)$$

and demand that

$$\Pi_1^2 = 1, \quad \Pi_2^2 = 1, \quad \Pi_3^2 = 1, \quad (1.2)$$

so that the length is given by

$$(\Pi_1 V_k)^2 + (i \Pi_2 V_0)^2 = V_k^2 - V_0^2 = V_k^2 + V_4^2. \quad (1.3)$$

Secondly we demand that the  $\Pi_l$  are invariant under continuous Lorentz transformations to that  $\Pi_1$  is always connected with space,  $i\Pi_2$  with time components. This is possible only if the relative velocity  $v$  entering the transformation is also replaced by an operator

$$v \rightarrow \Pi_3 v \quad \text{i. e.} \quad (\Pi_3 v)^2 = v^2. \quad (1.4)$$

A typical Lorentz transformation leading to relative motion in the 3-direction transforms  $V_\mu$  into  $V'_\mu$ . With the replacement (1.1), (1.4) and the requirement on  $\Pi_1$  and  $\Pi_2$  then

$$\left. \begin{aligned} (1 - v^2)^{1/2} \Pi_1 V'_3 &= \Pi_1 V_3 - \Pi_3 v (i\Pi_2) V_0 = \Pi_1 (V_3 - v V_0) \\ (1 - v^2)^{1/2} i\Pi_2 V'_0 &= -\Pi_3 v \Pi_1 V_3 + i\Pi_2 V_0 = i\Pi_2 (-v V_3 + V_0) \end{aligned} \right\} \quad (1.5)$$

must hold. This is possible only if (cycl. means cyclic permutation of the suffixes 1, 2, 3)

$$i\Pi_3 = \Pi_1 \Pi_2, \quad \Pi_1 \Pi_2 + \Pi_2 \Pi_1 = 0, \quad \text{cycl.} \quad (1.6)$$

Thus, as a consequence of the consistency conditions expressed by equations (1.5) the  $\Pi_l$  must satisfy the Pauli anticommutation rules. One might, at first sight, expect that  $\Pi_l = 1$  should satisfy consistency. This trivial possibility was excluded by the replacement of the time component  $V_0$  by  $i\Pi_2 V_0$  which in view of  $\Pi_2^2 = 1$  thus represents not an hermitean but an antihermitean operator. There is no reason why such operators should not be introduced provided that measurable quantities are described in terms of hermitean operators. It will be discussed in § 6 that this actually is the case. The introduction of the antihermitean operator  $i\Pi_2$  has been postulated above with the purpose of obtaining a non trivial extension of the previous description of four-vector fields. It touches no doubt, however, on the very deep difference between space and time components whenever questions of reflexion are concerned.

Conditions (1.6) are, of course, fulfilled by Pauli matrices  $a_l$  (or  $\mathbf{a}$ ) (dots and empty spaces represent zeros)

$$a_1 = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad a_2 = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}, \quad a_3 = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}. \quad (1.7)$$

The conditions (1.6) are also satisfied by other matrices obtained from (1.7) by unitary transformations\*). We therefore assume for the  $\Pi_l$ ,

$$\Pi_l = s^{-1} a_l s \quad (1.8)$$

where  $s$  is unitary. In its most general form,  $s$  and hence  $\Pi_l$  depend on three real parameters which can be expressed in terms of Eulerian angles  $\Omega = (\theta, \chi, \varphi)$  by

\*) More general transformations will not be considered.

$$s = e^{i\frac{\varphi}{2}a_3} e^{i\frac{\theta}{2}a_2} e^{i\frac{\chi}{2}a_3} = e^{i\frac{\theta}{2}a_2} e^{i\frac{\chi}{2}a_3} e^{i\frac{\varphi}{2}a_3} \quad \left. \vphantom{s = e^{i\frac{\varphi}{2}a_3} e^{i\frac{\theta}{2}a_2} e^{i\frac{\chi}{2}a_3}} \right\} (1.9)$$

$$0 \leq (\chi, \varphi) \leq 2\pi, \quad 0 \leq \theta \leq \pi$$

Eulerian angles are well known from the theory of spinning tops. They are defined in terms of an orthogonal frame (the external frame) in which the vector operator  $\mathbf{a}$  has the three components  $a_i$ . The Eulerian angles then define three orthogonal unit vectors  $\mathbf{u}_i$  (the inner frame;  $\mathbf{u}_3$  is denoted as figure axis) such that

$$\Pi_i = (\mathbf{a} \mathbf{u}_i) \quad (1.10)$$

In the external frame the  $\mathbf{u}_i$  have the following components,

$$\left. \begin{aligned} \mathbf{u}_1 &= (\cos\theta \cos\chi \cos\varphi - \sin\chi \sin\varphi, \quad \cos\theta \sin\chi \cos\varphi + \cos\chi \sin\varphi, \\ &\quad -\sin\theta \cos\varphi) \\ \mathbf{u}_2 &= (-\cos\theta \cos\chi \sin\varphi - \sin\chi \cos\varphi, \\ &\quad -\cos\theta \sin\chi \sin\varphi + \cos\chi \cos\varphi, \quad \sin\theta \sin\varphi) \\ \mathbf{u}_3 &= (\sin\theta \cos\chi, \quad \sin\theta \sin\chi, \quad \cos\theta). \end{aligned} \right\} (1.11)$$

Each  $\Pi_i$  can be considered as invariant under rotation of the external frame, being the inner product of two vectors  $\mathbf{a}$  and  $\mathbf{u}_i$ . Rotation then implies a unitary transformation acting on the  $\mathbf{a}$  followed by a rotation of the  $\mathbf{u}_i$  i.e. an appropriate change of the angles  $\Omega$ . This invariance of the  $\Pi_i$  means that each replacement of  $\Omega$  by  $\Omega_1$ , say, can alternatively be expressed in terms of an appropriate unitary transformation. Thus unitary transformation by  $\Pi_2$  which in view of  $\Pi_2 \Pi_1 \Pi_2 = -\Pi_1$  leads to space reflexion is equivalent to the replacement of  $\Omega = (\theta, \chi, \varphi)$  by  $\Omega_1 = (\pi - \theta, \chi - \pi, \pi - \varphi)$ . For with (1.11) one finds  $\Pi_1(\Omega_1) = -\Pi_1(\Omega)$ ;  $\Pi_2(\Omega_1) = \Pi_2(\Omega)$ .

To illustrate the new treatment we investigate the vector field  $\Pi_1 p_k \psi$ ,  $i \Pi_2 p_0 \psi$  of the momentum vector, where  $\psi(x_\mu, \Omega)$  is a two component function and  $p_\mu = -i \partial_\mu$ .  $\psi$  can be classified in terms of Pauli spinors  $\xi(\Pi)$ ,  $\eta(\Pi)$  satisfying

$$\left. \begin{aligned} \Pi_1 \xi(\Pi) &= \eta(\Pi), \quad \Pi_1 \eta(\Pi) = \xi(\Pi); \quad \Pi_2 \xi(\Pi) = +i \eta(\Pi), \\ \Pi_2 \eta(\Pi) &= -i \xi(\Pi); \quad \Pi_3 \xi(\Pi) = \xi(\Pi), \quad \Pi_3 \eta(\Pi) = -\eta(\Pi). \end{aligned} \right\} (1.12)$$

From (1.8) and (1.7) therefore

$$\left. \begin{aligned} \xi(\Pi) &= s^{-1} \xi(a), \quad \eta(\Pi) = s^{-1} \eta(a), \\ &\text{where } \xi(a) = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad \eta(a) = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} \end{aligned} \right\} (1.13)$$



Let now

$$\left. \begin{aligned} \psi_+(x, \Omega) &= \frac{1}{\sqrt{2}} (\xi(\Pi) + \eta(\Pi)) e^{iK_\mu x_\mu}, \\ \psi_-(x, \Omega) &= \frac{1}{\sqrt{2}} (\xi(\Pi) - \eta(\Pi)) e^{iK_\mu x_\mu}. \end{aligned} \right\} \quad (1.14)$$

The two cases  $\psi_+$  and  $\psi_-$  correspond thus to vector fields with space components  $+K_k \psi_+$  and  $-K_k \psi_-$  respectively. A similar separation of the time component into a forward ( $+K_0$ ) and backward ( $-K_0$ ) field is not possible. In fact  $\xi(\Pi) \pm i\eta(\Pi)$  which would diagonalise  $i\Pi_2$  has imaginary eigenvalues which indicates that for a single vector field the decision whether the time component runs forward or backward is not a measurable quantity. The case of two vector fields is quite different, as will be shown in the following (in particular § 6). Here a measurable quantity exists which compares the direction of the time components of the two fields. It measures whether for the two these directions are equal, or opposite.

Finally, we show that space reflexion represents now a special case of the continuous unitary transformation by

$$e^{i\frac{\vartheta}{2}\Pi_2} = \cos \frac{\vartheta}{2} + i\Pi_2 \sin \frac{\vartheta}{2}. \quad (1.17)$$

It yields

$$e^{i\frac{\vartheta}{2}\Pi_2} \Pi_1 e^{-i\frac{\vartheta}{2}\Pi_2} = \Pi_1 \cos \vartheta + \Pi_3 \sin \vartheta \quad (1.18)$$

and

$$e^{i\frac{\vartheta}{2}\Pi_2} \psi_\pm = \cos \frac{\vartheta}{2} \psi_\pm + \sin \frac{\vartheta}{2} \psi_\mp. \quad (1.19)$$

Clearly  $\vartheta = 180^\circ$ , transforms  $\Pi_1$  into  $-\Pi_1$  and hence reflects the space component  $\Pi_1 p_k$ .

In the following sections the ideas discussed here will be applied to the wave equation of bosons. On some simple assumptions it will be seen that from a single wave equation we obtain as special solutions the Maxwell equations, the equations for  $\pi$ - and  $K$ -mesons together with the correct isobaric spin assignments. We also predict existence of a particle with mechanical spin 1, with equal isobaric spin properties as  $K$ -mesons, but with larger rest mass.

Some of the following developments (§§ 2 and 3) have been presented before<sup>1)</sup> though in a less systematic form.

## 2. The Wave Equation of Bosons

Relativistic wave equations are based on the identity ( $\kappa$  = rest mass, units  $\hbar = 1$ ,  $c = 1$ )

$$p_\mu v_\mu + \kappa = p_k v_k - p_0 v_0 + \kappa = 0 \quad (2.1)$$

Here  $v_\mu$  is the four-velocity which in contrast to classical physics is defined independently of the four-momentum  $p_\mu$  in terms of certain operators, namely

$$p_\mu = -i\partial_\mu (2 \cdot 2), \quad v_\mu = i\beta_\mu. \quad (2.3)$$

For bosons, following KEMMER<sup>2)</sup> the  $\beta_\mu$  satisfy the algebraic relations

$$\beta_\mu \beta_\nu \beta_\rho + \beta_\rho \beta_\nu \beta_\mu = \delta_{\mu\nu} \beta_\rho + \delta_{\rho\nu} \beta_\mu. \quad (2.4)$$

In contrast to KEMMER, however, the  $\beta_\mu$  will be defined more explicitly in terms of two pairs of Pauli spins,  $\varrho_k, \varrho'_k; \sigma_k, \sigma'_k$  by

$$\beta_k = \frac{1}{2} (\varrho_1 \sigma_k + \varrho'_1 \sigma'_k), \quad \beta_4 = \frac{1}{2} (\varrho_2 + \varrho'_2) \quad (2.5)$$

They are thus  $16 \times 16$  matrices.

Our new treatment of four vectors requires the replacements (1.1) for both  $v_\mu$  and  $p_\mu$ . The independent definition of these quantities requires two sets of  $\Pi_l(\Omega)$ 's, say  $\Pi_l(\Omega)$  and  $\Pi'_l(\Omega')$  so that

$$p_k \rightarrow \Pi_1(\Omega) p_k, \quad p_0 \rightarrow i \Pi_2(\Omega) p_0 \quad (2.6)$$

$$v_k \rightarrow \Pi'_1(\Omega') v_k, \quad v_0 \rightarrow i \Pi'_2(\Omega') v_0. \quad (2.7)$$

Furthermore, since the length of a four vector is defined by (1.3) the product of two four vectors is given by

$$\left. \begin{aligned} p_\mu v_\mu &\rightarrow (\Pi_1 p_k) (\Pi'_1 v_k) + (i \Pi_2 p_0) (i \Pi'_2 v_0) = \\ &= \Pi_1 \Pi'_1 p_k v_k - \Pi_2 \Pi'_2 p_0 v_0 = \Pi_1 \Pi'_1 p_k v_k + \Pi_2 \Pi'_2 p_4 v_4. \end{aligned} \right\} \quad (2.8)$$

Making now the replacements (2.8), (2.2), (2.3), (2.5) in (2.1) leads to the wave equation

$$B_\mu \partial_\mu + M, \Psi = 0 \quad (2.9)$$

where

$$\left. \begin{aligned} B_k &= \frac{1}{2} \Pi_1(\Omega) \Pi'_1(\Omega') (\varrho_1 \sigma_k + \varrho'_1 \sigma'_k), \\ B_4 &= \frac{1}{2} \Pi_2(\Omega) \Pi'_2(\Omega') (\varrho_2 + \varrho'_2) \end{aligned} \right\} \quad (2.10)$$

Here the rest mass  $\kappa$  has also been replaced by a mass operator  $M$  which will be discussed below. The  $B_\mu$  are thus  $64 \times 64$  matrices but such a matrix representation will never be required. The adjoint equation to (2.9) is given by

$$\bar{\Psi}, \quad B_\mu \partial_\mu - M = 0 \quad (2.11)$$

where  $(\Psi^+)$  is the hermitean conjugate of  $\Psi$ )

$$\bar{\Psi} = \Psi^+ R_2 \quad (2.12)$$

and

$$R_1 = -\varrho_1 \varrho'_1, \quad R_2 = -\varrho_2 \varrho'_2, \quad R_3 = -\varrho_3 \varrho_3 \quad (2.13)$$

i.e.

$$R_1 R_2 = R_3, \quad R_1^2 = 1, \quad \text{cycl.} \quad (2.14)$$

It will be noticed that the wave equation depends on three pairs of Pauli spins,  $(\Pi_l, \Pi'_l)$ ,  $(\varrho_k, \varrho'_k)$ ,  $(\sigma_k, \sigma'_k)$ . The solutions will be discussed in terms of appropriate spin functions. For this purpose we introduce for each pair Pauli spinors  $\xi, \eta$ ;  $\xi', \eta'$  similar to (1.12). In case of ambiguity they will be denoted by  $\xi(a)$ ,  $\xi(II)$  etc., if they refer to Pauli matrices  $a, II$ , etc. Three symmetrical spin pair functions  $\Sigma_l$  and one antisymmetric  $\Sigma_4$ , can then be introduced by

$$\left. \begin{aligned} \Sigma_1 &= -\frac{i}{\sqrt{2}} (\xi \xi' - \eta \eta'), & \Sigma_2 &= -\frac{1}{\sqrt{2}} (\xi \xi' + \eta \eta'), \\ \Sigma_3 &= \frac{i}{\sqrt{2}} (\xi \eta' + \eta \xi') \end{aligned} \right\} \quad (2.15)$$

and

$$\Sigma_4 = \frac{i}{\sqrt{2}} (\xi \eta' - \eta \xi'). \quad (2.16)$$

They are orthogonal and normalised. In case of ambiguity they are denoted by  $\Sigma_\sigma(a)$ ,  $\Sigma_\sigma(II)$ ,  $\Sigma_\sigma(\varrho)$ ,  $\Sigma_\sigma(\sigma)$ , if they refer to the pairs  $a, II, \varrho, \sigma$  respectively. They have been chosen such as to diagonalise the three  $R_k$  (2.13) or the corresponding  $II, \sigma, a$  quantities—as shown in table 1.

Table 1  
Eigenvalues of  $R_k$

	$\Sigma_1$	$\Sigma_2$	$\Sigma_3$	$\Sigma_4$
$R_1$	1	-1	-1	1
$R_2$	-1	1	-1	1
$R_3$	-1	-1	1	1

It follows from the above that a total of  $4^3 = 64$  orthogonal normalised spin functions exist. In a matrix representation each would be represented by a column matrix containing 63 zeros and a one, the latter in a different place for each of the 64 functions.

We consider now first the 16 functions  $\Sigma(\varrho) \Sigma(\sigma)$  referring to the  $\varrho$  and  $\sigma$ 's, i.e. to the  $\beta_\mu$  alone. Under exchange of dashed and undashed oper-

ators we find 10 symmetrical functions  $\Gamma_s$  and six antisymmetric ones  $\Gamma_a$ . Of the latter  $\Sigma_2(\varrho) \Sigma_4(\sigma)$  is of no interest because

$$\beta_\mu \Sigma_2(\varrho) \Sigma_4(\sigma) = 0 \quad (2.17)$$

for all four  $\beta_\mu$ . The remaining five antisymmetric functions are

$$\left. \begin{aligned} \Gamma_a(k) &= \Sigma_4(\varrho) \Sigma_k(\sigma), & k &= 1, 2, 3 \\ \Gamma_a(4) &= \Sigma_3(\varrho) \Sigma_4(\sigma), & \Gamma_a(5) &= \Sigma_1(\varrho) \Sigma_4(\sigma) \end{aligned} \right\} \quad (2.18)$$

The ten symmetric functions will be denoted as follows

$$\left. \begin{aligned} \Gamma_s(E_k) &= \Sigma_1(\varrho) \Sigma_k(\sigma), & \Gamma_s(H_k) &= \Sigma_2(\varrho) \Sigma_k(\sigma) \\ \Gamma_s(\phi_k) &= -\Sigma_3(\varrho) \Sigma_k(\sigma), & \Gamma_s(\phi_4) &= \Sigma_4(\varrho) \Sigma_4(\sigma) \end{aligned} \right\} \quad (2.19)$$

The action of the  $\beta_\mu$  on these sixteen functions can be seen in a simple way from  $5 \times 5$  and  $10 \times 10$  matrix representations denoted as  $\beta_\mu(5)$  and  $\beta_\mu(10)$  respectively. In the former  $\Gamma_a(\beta)$ ,  $\beta = 1, 2 \dots 5$ , are column matrices with zero's except with a one at the  $\beta - th$  row. This implies that

$$\left. \begin{aligned} \beta_1(5) &= \begin{pmatrix} & & 1 \\ & & \vdots \\ 1 & \dots & \end{pmatrix}, & \beta_2(5) &= \begin{pmatrix} & & 1 \\ & & \vdots \\ \dots & 1 & \end{pmatrix}, \\ \beta_3(5) &= \begin{pmatrix} & & \vdots \\ & & 1 \\ \dots & 1 & \end{pmatrix}, & \beta_4(5) &= \begin{pmatrix} & & \vdots \\ & & -i \\ \dots & i & \end{pmatrix}. \end{aligned} \right\} \quad (2.20)$$

For the symmetric case we may represent the  $\Gamma_s(\beta)$ ,  $\beta = 1, 2, \dots, 10$  by column matrices with zeros except a one at the  $\beta - th$  row, where  $E_k$  stands for  $\beta = 1, 2, 3$ ;  $H_k$  for  $\beta = 4, 5, 6$ ;  $\phi_\mu$  for  $\beta = 7, 8, 9, 10$ . The matrices obtained in this manner are identical with Kemmer's  $10 \times 10$  matrices (his equation (53)) provided all signs are reversed. They will not be reproduced here.

A complete classification of the spin functions is obtained from the  $\Gamma_a$  and  $\Gamma_s$  by multiplication with the four  $\Sigma(II)$ . It will be seen that this would lead to  $\pi$ -mesons and light quanta only. To obtain  $K$ -mesons as well it is necessary to introduce further operators in  $(\Omega, \Omega')$  space (denoted as isospace). It is of course possible to introduce operators in this space corresponding to angular momenta different from Pauli type of spin. At present, however, it will be necessary to introduce a momentum  $I$  around the figure axis only—though in future it may well be required to introduce more general quantities. Let thus

$$I = -i \partial_\omega + \frac{1}{4} (II_3 - II'_3) = -i U^{-1} \partial_\omega U \quad (2.21)$$

which commutes with all  $\Pi_l, \Pi'_l$ . Here

$$\omega = \varphi - \varphi' \quad \text{i. e.} \quad \partial_\omega = \frac{1}{2} (\partial_\varphi - \partial_{\varphi'}) \quad (2.22)$$

and

$$U = e^{i \frac{\varphi}{2} \Pi_3} e^{i \frac{\varphi'}{2} \Pi'_3} = e^{i \frac{1}{4} \omega (\Pi_3 - \Pi'_3)} e^{i \frac{1}{4} (\varphi + \varphi') (\Pi_3 + \Pi'_3)}. \quad (2.23)$$

Like the  $\Pi_l, \Pi'_l$  the operator  $I$  is invariant under rotation of the external frame.

In addition to the four functions  $\Sigma_\sigma(\Pi)$  we shall require four symmetric functions  $\kappa_\sigma$ ,

$$\kappa_l = \cos \omega \Sigma_l(\Pi), \quad \kappa_4 = -\sin \omega \Sigma_4(\Pi), \quad (2.24)$$

and four antisymmetric functions  $\nu_\sigma$ ,

$$\nu_l = -\sin \omega \Sigma_l(\Pi), \quad \nu_4 = \cos \omega \Sigma_4(\Pi). \quad (2.25)$$

The symmetry refers to interchange of dashed and undashed operators and coordinates so that  $\Sigma_l$  and  $\cos \omega$  are symmetric,  $\Sigma_4$  and  $\sin \omega$  anti-symmetric. It will be noted that

$$I^2 \Sigma_\sigma(\Pi) = 0, \quad I^2 \kappa_\sigma = \kappa_\sigma, \quad I^2 \nu_\sigma = \nu_\sigma. \quad (2.26)$$

Wave functions  $\Psi$  can now be written as a sum over spin functions each multiplied by a real space-time function. This reality condition will be found to be of considerable importance. Furthermore we postulate that only those spin functions which are antisymmetric under exchange of all pairs of dashed and undashed operators should be used. This leads to four types of wave functions  $\Psi_m, \Psi_\pi, \Psi_\kappa, \Psi_\nu$ . Here  $\Psi_m$  and  $\Psi_\pi$  are based on  $\Sigma_4(\Pi)$  and  $\Sigma_l(\Pi)$  respectively forming a  $\pi$ -singlet and triplet. From the postulate of antisymmetry then,  $\Psi_m$  depends on  $\Sigma_4(\Pi) \Gamma_s$ , and  $\Psi_\pi$  on  $\Sigma_k(\Pi) \Gamma_a$ , so that we can write

$$\Psi_m = \Sigma_4(\Pi) \left\{ \sum_{k=1}^3 (\Gamma_s(E_k) E_k(x_\mu) - \Gamma_s(H_k) H_k(x_\mu) + \right. \\ \left. + \Gamma_s(\phi_k) \phi_k(x_\mu)) - \Gamma_s(\phi_4) \phi_4(x_\mu) \right\} \quad (2.27)$$

and

$$\Psi_\pi = \sum_{l=1}^3 \sum_{\beta=1}^5 \Sigma_l(\Pi) \Gamma_a(\beta) \Phi_{l\beta}(x_\mu) \quad (2.28)$$

where the space-time functions  $E_k(x_\mu)$  etc.,  $\Phi_{l\beta}(x_\mu)$  are assumed to be real.

Two further wave functions  $\Psi_\kappa$  and  $\Psi_\nu$  can be formed from the  $\kappa_\sigma$  and  $\nu_\sigma$ , the former with the help of  $\Gamma_a$ , and the latter with  $\Gamma_s$ ,



$$\Psi_{\kappa} = \sum_{\sigma=1}^4 \sum_{\beta=1}^5 \kappa_{\sigma} \Gamma_{\sigma}(\beta) X_{\sigma\beta}(x_{\mu}) \quad (2.29)$$

and

$$\Psi_{\nu} = \sum_{\sigma=1}^4 \sum_{\beta=1}^{10} \nu_{\sigma} \Gamma_{\sigma}(\beta) V_{\sigma\beta}(x_{\mu}) \quad (2.30)$$

again with real functions  $X_{\sigma\beta}(x_{\mu})$  and  $V_{\sigma\beta}(x_{\mu})$ . We note with (2.26)

$$I^2 \Psi_m = 0, \quad I^2 \Psi_{\pi} = 0, \quad I^2 \Psi_{\kappa} = \Psi_{\kappa}, \quad I^2 \Psi_{\nu} = \Psi_{\nu}. \quad (2.31)$$

### Isobaric Spin and Charge Operators

The various spin operators permit formulation of conservation laws from the wave equations (2.9) and (2.11). For this purpose let  $J_c$  be an operator independent of  $x_{\mu}$  which commutes with the  $B_{\mu}$  and with  $M$ . Then

$$\partial_{\mu} J_{c\mu} = 0 \quad \text{where} \quad J_{c\mu} = i \bar{\Psi} J_c B_{\mu} \Psi. \quad (2.32)$$

We shall also demand that  $J_c$  be symmetrical in all dashed and undashed operators. A total of sixteen such  $J_c$  operators exist which can be derived from the  $(\Pi_l + \Pi'_l) R_l$ , the  $I(\Pi_l - \Pi'_l) R_l$  or from their products. Since according to (2.31) eigenvalues  $I^2 = 0$  and  $I^2 = 1$  of  $I^2$  only are required it is possible to derive these sixteen  $J_c$  from three basic operators  $A_l$  (**A**)

$$A_l = \frac{1}{2} R_l (\mu \Pi_l + \mu' \Pi'_l) = \frac{1}{2} R_l \alpha_l \quad (\text{no sum}) \quad (2.33)$$

where

$$\left. \begin{aligned} \mu &= \frac{1 - I^2 + 2I}{1 + I^2}, \quad \mu' = \frac{1 - I^2 - 2I}{1 + I^2} \\ \text{i. e. } \mu^2 &= \mu'^2 = 1; \quad \mu = \mu' = 1 \text{ if } I = 0; \quad \mu = I, \\ &\mu' = -I \text{ if } I^2 = 1. \end{aligned} \right\} \quad (2.34)$$

The  $R_l$  (2.13) are required here so that  $A_l$  commutes with  $B_{\mu}$ . From  $A_l$  we derive three operators  $Q_l(\mathbf{Q})$  by

$$i \mathbf{Q} = \mathbf{A} \times \mathbf{A}, \quad \text{i. e. } Q_l = \frac{1}{2} R_l (\Pi_l + \Pi'_l) = R_l q_l. \quad (2.35)$$

Besides these six operators  $A_l$ ,  $Q_l$  ten further ones are obtained for  $J_c$  namely six  $E_{kl}$ , three  $A_{kl}$ , and  $J_c = 1$ . Here

$$E_{kl} = A_k A_l + A_l A_k - \delta_{kl} = \frac{1}{2} \mu \mu' R_k R_l (\Pi_k \Pi'_l + \Pi_l \Pi'_k), \quad (2.36)$$

and

$$\left. \begin{aligned} A_{kl} &= \frac{1}{2} (A_k Q_l - A_l Q_k + Q_l A_k - Q_k A_l) = \\ &\frac{1}{4} R_k R_l (\mu - \mu') (\Pi_k \Pi'_l - \Pi_l \Pi'_k) \end{aligned} \right\} \quad (2.37)$$

Introduction of these ten operators  $J_c(1, E_{kl}, A_{kl})$  into expression (2.32) for  $J_{c\mu}$  leads after integration over spin variables to antisymmetric expressions in the real space-time functions entering  $\Psi$ . These expressions vanish if the space-time functions commute. These ten  $J_c$  can, therefore, be used to formulate the reality conditions in an invariant manner. They are also expected to be of use for the formulation the commutation rules between these real space time functions (cf. § 5).

The remaining six  $J_c$  namely  $Q_l$  and  $A_l$  lead in a similar manner to symmetric expressions and can therefore be used for the formulation of the two main conservation laws, conservation of electric charge and of the third component of isobaric spin. We note in this connection that  $Q_3$  for instance commutes with  $A_3$ , but with none other of the six  $Q_l, A_l$ . From  $Q_l$  and  $A_l$  we define two vector operators  $\mathbf{T}$  and  $\mathbf{S}$  by

$$T_l = \frac{1}{2} (Q_l + A_l) = \frac{R_l}{1 + I^2} \left( \frac{\Pi_l + \Pi'_l}{2} + I \frac{\Pi_l - \Pi'_l}{2} \right) \quad (2.38)$$

and (use  $I^3 = I$  which holds for  $I^2 = 0, 1$ )

$$S_l = \frac{1}{2} (Q_l - A_l) = \frac{R_l I^2}{1 + I^2} \left( \frac{\Pi_l + \Pi'_l}{2} - I \frac{\Pi_l - \Pi'_l}{2} \right). \quad (2.39)$$

These operators as well as  $\mathbf{Q}$  satisfy the angular momentum relations

$$\mathbf{Q} \times \mathbf{Q} = i \mathbf{Q}, \quad \mathbf{T} \times \mathbf{T} = i \mathbf{T}, \quad \mathbf{S} \times \mathbf{S} = i \mathbf{S} \quad (2.40)$$

(provided  $I^2 = 0, 1$ ) though the generating operator  $\mathbf{A}$  does not do so. We shall interpret  $Q_3$  and  $\mathbf{T}$  as the operators for electric charge and isobaric spin.  $\mathbf{S}$  will be denoted as isospin shift because  $Q_3 = T_3 + S_3$ .  $S_3$  was originally introduced by HEISENBERG<sup>3)</sup> together with isobaric spin;  $2 S_3$  is the so called strangeness. In connection with these interpretations it will be remembered that the  $\Pi_l, \Pi'_l$ , and  $I$  are invariant under rotations of the external frame (in  $\mathcal{Q}, \mathcal{Q}'$  space) in a similar way in which the angular momenta of a spinning top, referred to its axes of symmetry are invariant under rotation. Since the first and second components,  $\Pi_1, \Pi_2$ , were connected with reflexions it seems natural to use the third one for the definition of charge. This, however, is no compelling reason. It will be shown in the discussion § 6, that a modification of the mass operator introduced below can be given such that the third components  $Q_3$  and  $T_3$  only are conserved (as well as  $T^2$ ).

Matrix representations of the  $J_c$  are frequently useful. For this purpose we note that the operators  $\alpha_l$  and  $q_l$  introduced in (2.33) and (2.35) are given by

$$\alpha_l = \alpha_l(4) = I \frac{\Pi_l - \Pi'_l}{2}, \quad \text{if } I^2 = 1 \quad (2.41)$$

and

$$\alpha_l = \alpha_l(3+1) = \frac{\Pi_l + \Pi'_l}{2} = q_l = q_l(4) = q_l(3+1), \quad \text{if } I^2 = 0 \quad (2.42)$$

Here  $\alpha_l(4)$  denotes a  $4 \times 4$  matrix;  $\alpha_l(3+1)$  indicates a  $4 \times 4$  matrix which can be decomposed into a  $3 \times 3$  and a  $1 \times 1$  matrix. The actual form of these matrices is obtained by representing the functions  $\Sigma_\sigma(\Pi)$  (referring to  $I^2 = 0$ )  $\kappa_\sigma$  and  $\nu_\sigma$  (referring to  $I^2 = 1$ ) by four sets of column matrices with zeros in every row except the  $\sigma - t h$  which contains a 1. We then find

$$\alpha_1(4) = \left( \begin{array}{c|c} & -i \\ \hline & \cdot \\ & \cdot \\ i & \cdot \end{array} \right), \quad \alpha_2(4) = \left( \begin{array}{c|c} & \cdot \\ \hline & -i \\ & \cdot \\ \cdot & i \end{array} \right), \quad \alpha_3(4) = \left( \begin{array}{c|c} & \cdot \\ \hline & \cdot \\ & -i \\ \cdot & i \end{array} \right), \quad (2.43)$$

and

$$\left. \begin{aligned} \alpha_1(3+1) &= q_1(4) \\ &= q_1(3+1) = \left( \begin{array}{c|c} \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & -i \\ \cdot & i & \cdot \\ \hline & & \cdot \end{array} \right), \\ q_2(4) &= \left( \begin{array}{c|c} \cdot & \cdot & i \\ \cdot & \cdot & \cdot \\ -i & \cdot & \cdot \\ \hline & & \cdot \end{array} \right), \quad q_3(4) = \left( \begin{array}{c|c} \cdot & -i & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot \\ \hline & & \cdot \end{array} \right). \end{aligned} \right\} \quad (2.44)$$

The decomposition of  $\alpha_l(3+1) = q_l(3+1) = q_l(4)$  is indicated by rimming.

It seems of interest to mention here that  $\alpha_l(4)$  and  $\alpha_l(3) = q_l(3)$  are a four and a three dimensional representation of an  $\alpha$ -algebra, based on three generating elements  $\alpha_l$  satisfying the same rules (2.4) as do the four  $\beta_\mu$ . This algebra has a further three dimensional representation by  $\alpha_l(3^-) = -q_l(3)$ , and a one dimensional one,  $\alpha_l(1) = (\cdot)$ .

*Mass Operator.* From Kemmer's investigations it follows that the  $\beta_\mu(5)$  connected with antisymmetric spin functions  $\Gamma_a$  occurring in  $\Psi_\pi$  and  $\Psi_\kappa$  lead to particles with mechanical spin 0, while the  $\beta_\mu(10)$  connected with  $\Gamma_s$  lead to spin 1 particles. An operator  $M$  can be designed such that its eigenvalue differs for the four wave functions (2.27)–(2.30) while it commutes with  $Q_3$ ,  $T_3$ ,  $T^2$ , and  $I^2$ . This does not completely determine the forms of  $M$ . An ad hoc definition is, therefore, proposed which will be seen to yield a correct mass ratio for  $\pi$ - and  $K$ -mesons:

$$M = M(\Pi) + M(\varrho, \sigma) \quad (2.45)$$

where ( $C$  and  $c$  are numerical constants)

$$M(\Pi) = C(1 + I^2)^2(T^2 + I^2) \quad (2.46)$$

and

$$M(\varrho, \sigma) = c \left( \frac{\varrho_3 + \varrho_3}{2} \right)^2 \sum_{k=1}^3 \left( \frac{\sigma_k + \sigma'_k}{2} \right)^2. \quad (2.47)$$

We note that  $M(\varrho, \sigma) \Gamma_a = 0$ .

The form of  $M(\Pi)$  is such that in a simple manner it separates eigenvalues corresponding to different values of  $T^2$  and  $I^2$ .  $M(\varrho, \sigma)$  will be required to obtain the Maxwell equations. Clearly a number of other possibilities for  $M$  do exist. A particular modification leading to conservation of the third components  $Q_3, T_3$  only and not of  $Q_1, Q_2, T_1, T_2$  would be obtained by multiplication of (2.45) by  $\Pi_3 \Pi'_3$ , cf. § 6.

### 3. Solutions

We shall now introduce the four wave functions (2.27)–(2.30) into the wave equation (2.9) using  $M$  from (2.45)–(2.47). In each case a number of wave equations for the real space time functions will be found after multiplication with appropriate spin functions and integration over the spin variables. The procedure can be simplified, however, by using matrix representations appropriate for the spin functions involved in the particular case.

*Maxwell field  $\Psi_m$ .* The wave function  $\Psi_m$ , (2.27) is proportional to  $\Sigma_4(\Pi)$ . Hence with (2.31), (2.46), (2.35) and (2.38)

$$I \Psi_m = 0, \quad M(\Pi) \Psi_m = 0, \quad Q_l \Psi_m = 0, \quad T_l \Psi_m = 0 \quad (3.1)$$

and with (2.47)

$$\left. \begin{aligned} M(\varrho, \sigma) \Gamma_s(E_k) &= 2c \Gamma_s(E_k), & M(\varrho, \sigma) \Gamma_s(H_k) &= 2c \Gamma_s(H_k), \\ M(\varrho\sigma) \Gamma_s(\phi_\mu) &= 0. \end{aligned} \right\} \quad (3.2)$$

Thus,  $\Psi_m$  has one  $\Pi$ -component describing an isobaric spin singlet, and ten  $(\varrho, \sigma)$  components. Action of the  $\beta_\mu$  on the  $\Gamma_s$  may be represented in terms of  $\beta_\mu(10)$  and the ten resulting space time equations are identical with the Maxwell equations in the form

$$\left. \begin{aligned} \text{grad } \phi_4(x_\mu) + \partial_0 \phi(x_\mu) + 2c E(x_\mu) &= 0, \\ \text{curl } \phi(x_\mu) - 2c H(x_\mu) &= 0, & \text{curl } H(x_\mu) - \partial_0 E(x_\mu) &= 0, \\ -\text{div } E(x_\mu) &= 0. \end{aligned} \right\} \quad (3.3)$$

The mass constant  $c$  thus simply gives a measure for the vector potential  $\phi_\mu(x_\mu)$ .

*$\pi$ -Mesons,  $\Psi_\pi$ .* For the wave function  $\Psi_\pi$  (2.28) depending on  $\Sigma_l(\Pi)$  clearly

$$I \Psi_\pi = 0, \quad M(\pi) \Psi_\pi = 2C \Psi_\pi, \quad M(\varrho, \sigma) \Psi_\pi = 0. \quad (3.4)$$

It represents an isobaric spin triplet where using (2.35), (2.38) and (2.41)

$$Q_l = T_l = R_l q_l(3). \quad (3.5)$$

Here  $q_l(3)$  is the  $3 \times 3$  rimmed sub matrix of  $q(3+1)$  in (2.44), and the matrix acts on the suffix  $l$  of the real space time functions  $\Phi_{\beta\gamma\lambda\mu}$ . Since  $\Psi_\pi$  depends on the  $\Gamma_\alpha$ , the  $\beta_\mu$  according to (2.20) can be represented by matrices  $\beta_\mu(5)$  acting on the suffix  $\beta$  of  $\Phi_{\beta\gamma\lambda\mu}$ . Action of the  $\Pi_1$ ,  $\Pi_2$  and  $\Pi_3$ ,  $\Pi_4$  which enter the wave equation by (2.10) can be obtained from table 1. Thus if we introduce matrices  $\varepsilon_{\alpha\beta}(4) = \varepsilon_{\alpha\beta}(3+1)$  by

$$\left. \begin{aligned} \varepsilon_{11}(4) = \varepsilon_{11}(3+1) &= \begin{pmatrix} 1 & & \\ -1 & & \\ & & 1 \end{pmatrix}, \quad \varepsilon_{22}(4) = \varepsilon_{22}(3+1) = \begin{pmatrix} -1 & & \\ & 1 & \\ & & -1 \end{pmatrix}, \\ \varepsilon_{33}(4) = \varepsilon_{33}(3+1) &= \begin{pmatrix} -1 & & \\ -1 & & \\ & & 1 \end{pmatrix} \end{aligned} \right\} \quad (3.6)$$

and if we understand by  $\varepsilon_{\alpha\beta}(3)$  the rimmed  $3 \times 3$  sub-matrices, then the wave equation becomes after integration over spin variables

$$\varepsilon_{11}(3) \beta_\mu(5) \partial_\mu - \varepsilon_{22}(3) \beta_\mu(5) \partial_\mu - 2\Gamma \quad \Phi_{\beta\gamma\lambda\mu} = 0 \quad (3.7)$$

where  $\Phi_{\beta\gamma\lambda\mu}$  represents the  $\Phi_{\beta\gamma\lambda\mu}$  with the  $\varepsilon_{\alpha\beta}$  acting on the three suffixes  $l$  and the  $\beta_\mu(5)$  on the five suffixes  $\beta$ . From Kemmer's investigations it is known that the  $\beta_\mu(5)$  described particles with zero mechanical spin; equation (3.7) contains three such particles, with eigenvalues of  $Q_3 = T_3$  obtained by diagonalising  $q_3(3)$  i.e.  $(1, 0, -1)$ . Clearly (3.7) describes  $\pi$ -mesons provided the constant  $\Gamma$  is chosen appropriately.

*K-Mesons.*  $\Psi_\kappa$ . The wave function  $\Psi_\kappa$  (2.20), depends on the four  $\alpha_\mu$  so that with (2.31), (2.46) and (2.47)

$$I^2 \Psi_\kappa = \Psi_\kappa, \quad M(\Pi) \Psi_\kappa = 7\Gamma \Psi_\kappa, \quad M(\eta, \sigma) \Psi_\kappa = 0. \quad (3.8)$$

It represents two isobaric spin doublets with (use (2.35), (2.38), (2.39) (2.41) and (2.42)).

$$\left. \begin{aligned} Q_l \Psi_\kappa &= R_l q_l(4) \Psi_\kappa, \quad T_l \Psi_\kappa = \frac{1}{2} R_l (q_l(4) - \alpha_l(4)) \Psi_\kappa, \\ S_l \Psi_\kappa &= \frac{1}{2} R_l (q_l(4) - \alpha_l(4)) \Psi_\kappa. \end{aligned} \right\} \quad (3.9)$$

Since  $\Psi_\kappa$  depends on the  $\Gamma_\alpha$  the  $\beta_\mu$  can be represented by the  $\beta_\mu(5)$  and the wave equation becomes

$$\varepsilon_{11}(4) \beta_\mu(5) \partial_\mu - \varepsilon_{22}(4) \beta_\mu(5) \partial_\mu - 7\Gamma \quad \Psi_\kappa = 0 \quad (3.10)$$



where  $X$  represents the functions  $X_{\sigma, \beta}(x_\mu)$  with the  $\varepsilon_{\sigma k}(4)$ ,  $\alpha_i(4)$ ,  $q_i(4)$  acting on the four suffixes  $\sigma$ , and the  $\beta_\mu(5)$  on the five suffixes  $\beta$ . This equation thus describes four particles with zero mechanical spin. They have electric charge (1, 0, -1, 0) and 3rd isobaric spin components (1/2, -1/2, 1/2, 1/2) as is seen by diagonalising  $q_3(4)$  and  $\alpha_3(4)$  and using (3.9). Equation (3.10) thus described  $K$ -mesons with mass  $7C$ . Its ratio 7:2 to the  $\pi$ -meson mass is in close agreement with the experimental value 966:273 for charged  $K$ - and  $\pi$ -mesons.

*$\nu$ -Mesons,  $\Psi_\nu$ .* This case based on the wave function  $\Psi_\nu$  (2.30), again leads to two isobaric spin doublets with the same charge and isobaric spin properties as  $K$ -mesons. The antisymmetry of the four  $\nu_\sigma$ , however, entails the use of  $\Gamma_+$  instead of  $\Gamma_-$ , and hence of a description of the  $\beta_\mu$  by  $\beta_\nu(10)$ . This wave function therefore describes particles with mechanical spin 1, by

$$\varepsilon_{11}(4) \beta_\nu(10) \partial_\nu - \varepsilon_{22}(4) \beta_\nu(10) \partial_2 - (7C + 2c) \nu, \quad V = 0. \quad (3.11)$$

Here  $V$  represents the functions  $V_{\sigma, \beta}(x_\mu)$  with the  $\varepsilon_{\sigma k}(4)$ ,  $q_i(4)$  and  $\alpha_i(4)$  acting on the four suffixes  $\sigma$  and the  $\beta_\nu(10)$  acting on the ten suffixes  $\beta$ .  $\nu$  is a diagonal  $10 \times 10$  matrix acting on  $\beta$  with 1 in the first six, 0 in the following four diagonal positions (cf. 3.2). Formation of the second order (in  $\partial_\nu$ ) equations shows that this particle has a mass

$$M_\nu = (7C(7C + 2c))^{\frac{1}{2}}. \quad (3.12)$$

To derive this expression in a formal way from (3.11) it must be noticed that the  $\beta_\nu(10)$  do not commute with the matrix  $\nu$ , but as can be seen from the matrix representation

$$\beta_\mu(10) \nu + \nu \beta_\mu(10) = \beta_\mu(10). \quad (3.13)$$

Thus, it has been shown that the wave equation (2.9) together with the postulate of 'spin' antisymmetry leads to the Maxwell equations (3.3) and to the wave equations (3.7) and (3.10) for  $\pi$ - and  $K$ -mesons respectively, together with the correct isobaric spin assignments. It also leads to a  $\nu$ -meson which has unit mechanical spin, equal isobaric properties with the  $K$ -mesons, but a different mass.

*Energy Momentum Tensor.* The  $B_\mu$  entering wave equation (2.9) satisfy the same algebraic rules (2.4) as do the  $\beta_\mu$ . A symmetric energy momentum tensor  $\Theta_{\mu\nu}$  can, therefore, be derived in the same manner as done by KEMMER provided it is observed that  $M$  is now an operator. Thus generalising from Kemmer's equation (19) we have (the commutator of  $M(q, \sigma)$  and  $B_\mu B_\nu$  applied to  $\Psi$  vanishes)

$$\Theta_{\mu\nu} = \bar{\Psi} M (B_\mu B_\nu - B_\nu B_\mu) \Psi - \delta_{\mu\nu} \bar{\Psi} M \Psi. \quad (3.14)$$

In particular, since  $\Pi_1 \Pi'_1 \Pi_2 \Pi'_2 = -\Pi_3 \Pi'_3$ ,

$$\Theta_{4\kappa} = -\bar{\Psi} M \Pi_3 \Pi'_3 (\beta_4 \beta_\kappa + \beta_\kappa \beta_4) \Psi \quad (3.15)$$

and using  $2B_4^2 - 1 = -R_2$ ,  $R_2^2 = 1$  and the definition (2.12) of  $\bar{\Psi}$ ,

$$\Theta_{44} = -\Psi^+ M \Psi. \quad (3.16)$$

For each of the fields discussed above this leads to the well known expressions, e.g.

$$\Theta_{44} = -2c(E^2(x_\mu) + H^2(x_\mu)) \quad (3.17)$$

for the Maxwell case,

$$\Theta_{44} = -2C \sum_{l=1}^3 \sum_{\beta=1}^5 \Phi_{l\beta}^2(x_\mu) \quad (3.18)$$

for  $\pi$ -mesons, etc.

If we demand that the energy density  $-\Theta_{44}$  be positive then both  $C$  and  $c$  must be positive. If furthermore  $C = c$  then  $M_\nu \simeq 1100$  electron masses would follow.

#### 4. Reflexions

In the discussion of § 1 we have demanded that reflexions other than coordinate replacements should be expressed as continuous transformations. This led to the introduction of the  $\Pi_i(\Omega)$ ,  $\Pi'_i(\Omega')$  in the new  $(\Omega, \Omega')$  angular space (isospace). As a consequence through the factors  $\Pi_1 \Pi'_1$  and  $\Pi_2 \Pi'_2$  the wave equation (2.9) has four components for each one in the previous treatments. This wave equation contains automatically the reflected ones expressed by appropriate changes in the angles  $\Omega$  or  $\Omega'$ . Thus, as can be seen from (1.11) and (1.10), replacement of  $\Omega = (\theta, \chi, q)$  by  $\Omega_1 = (\pi - \theta, \chi - \pi, \pi - q)$  (leaving  $\Omega'$  unaltered) replaces  $\Pi_1(\Omega) \Pi'_1(\Omega')$  by  $\Pi_1(\Omega_1) \Pi'_1(\Omega') = -\Pi_1(\Omega) \Pi'_1(\Omega')$  leaving  $\Pi_2 \Pi'_2$  unaltered. It is therefore equivalent to replacing  $x_k$  by  $-x_k$ . Thus the wave equation remains invariant if simultaneously we replace  $x_k$  by  $-x_k$  and  $\Omega$  by  $\Omega_1$  provided  $\Psi(x_k, \Omega)$  is also replaced by  $\Psi(-x_k, \Omega_1)$  and if similar replacements are made in all definitions of charge, isobaric spin and other operators. We remember that transformations of the angles  $\Omega, \Omega'$  are equivalent to unitary transformations. The above case for example, is equivalent to unitary transformation by  $\Pi_2$  for  $\Pi_2(\Pi_1 \Pi'_1) \Pi_2 = -\Pi_1 \Pi'_1$ . Similar transformations can be made in connection with reflexion of  $x_4$  or of all four  $x_\mu$ . Transformations of this kind will be denoted as insignificant transformations. They demonstrate that the choice of the original frame  $(x_k, x_0)$  is arbitrary. We might as well have chosen  $(-x_k, x_0)$ . Quite a number of other arbitrary choices have been made, of

course. One, for instance, is the choice of  $+i$  in (1.1) which might have been replaced by  $-i$ . The choice between these two is equivalent to the choice of a right handed or a left handed  $\Pi_l$  system. Another arbitrary choice concerns the choice  $+i$  in the definition of  $\mathbf{Q}$  in (2.35). Insignificant transformations can always be derived such as to put into evidence that a certain choice of a coordinate frame may be replaced by another.

*Significant Transformations.* In contrast, significant transformations make statements concerning different physical states. As an example we consider charge conjugation. We consider the replacement  $\Omega \rightarrow \Omega_1$  discussed above, or its equivalent, unitary transformation by  $\Pi_2$ , and supplement it by the unitary transformation by  $\Pi'_2$ , i.e. we are interested in simultaneous replacements  $\Omega \rightarrow \Omega_1$ ,  $\Omega' \rightarrow \Omega'_1$  or in the equivalent unitary transformation by

$$C_2 = \Pi_2 \Pi'_2 = C_2^{-1}. \quad (4.1)$$

Since both  $\Pi_2$  and  $\Pi'_2$  are equivalent to replacing in the wave equation  $x_k$  by  $-x_k$ ,  $C_2$  leaves the wave equation invariant, but it transforms  $\Psi$  into

$$\Psi_c(x_\kappa, \Omega, \Omega') = C_2 \Psi(x_\kappa, \Omega, \Omega'). \quad (4.2)$$

If now we were to replace in all definitions the  $\Pi_l$ ,  $\Pi'_l$  by the transformed ones, e.g.

$$Q_3 \rightarrow Q_{3c} = C_2 R_2 \frac{\Pi_3 + \Pi'_3}{2} C_2^{-1} = -Q_3 \quad (4.3)$$

then complete invariance would be obtained, e.g.

$$J_\mu = \bar{\Psi} Q_3 B_\mu \Psi = \bar{\Psi}_c Q_{3c} B_\mu \Psi_c \quad (4.4)$$

and the transformation would be an insignificant one. To obtain a significant transformation we shall not transform the various definitions (4.3), etc., but make use of the fact that together with a certain  $\Psi(x_\mu)$ , another wave function,  $\Psi_c(x_\mu)$  also solves the same wave equation. This  $\Psi_c$  then leads to a different physical state, namely one in which all electric charges are reserved, because

$$\bar{\Psi}_c Q_3 B_\mu \Psi_c = \bar{\Psi} (C_2 Q_3 C_2) B_\mu \Psi = -\bar{\Psi} Q_3 B_\mu \Psi \quad (4.5)$$

The physical significance of  $C_2$  is that to each wave function  $\Psi$  describing certain types of particles another one  $\Psi_c$  is coordinated in which all electric charges and currents are reversed.

Charge conjugation can be considered as a special case of a number of continuous transformations like charge rotation

$$C_2(\vartheta) = e^{i\vartheta} e^{i\vartheta Q_2} = e^{i\vartheta} (1 + Q_2^2 (\cos \vartheta - 1) + i Q_2 \sin \vartheta) \quad (4.6)$$

where  $\vartheta$  is a parameter;  $C_2 = C_2(\pi)$ . This transformation too leaves the wave equation invariant; it rotates the vector operator  $\mathbf{Q}$  by an angle  $\vartheta$

around the  $Q_2$  axis. In view of definition (2.35) of  $\mathbf{Q}$  this transformation involves not only the  $\Pi_l, \Pi'_l$  but also  $R_2$ , except when  $\vartheta = \pi$ . Another continuous transformation which leaves the wave equation invariant and contains  $C_2$  as a special case is by

$$D_2(\vartheta) = e^{i\vartheta\Pi_2\Pi'_2}; \quad D_2\left(\frac{\pi}{2}\right) = i C_2. \quad (4.7)$$

*Internal Parity Reflexion.* This reflexion can be defined as a significant transformation which leaves the (mechanical) spin operator  $1/2(\sigma_k + \sigma'_k)$  invariant but reverses the energy flux  $\theta_{4k}$  without affecting the charge. Clearly unitary transformation by  $R_2 = -\varrho_2 \varrho'_2$  serves the purpose as may be seen from (3.15) and (2.5). The transformation of the wave function

$$R_2 \Psi = -\varrho_2 \varrho'_2 \Psi \quad (4.8)$$

affects the spin functions  $\Sigma_\sigma(\varrho)$  only in a manner shown in table 1. It is, therefore, equivalent to multiplying the various space time functions entering  $\Psi$  by  $+1$  or  $-1$ . Table 2 shows this change of sign for the Maxwell and the  $\pi$ -meson functions obtained with the help of (2.27), (2.28), (2.18) and (2.19).

Table 2

	$E_k$	$H_k$	$\phi_k$	$\phi_4$	$\Phi_{l_k}$	$\Phi_{l_4}$	$\Phi_{l_5}$
$R_2$	-	+	-	+	+	-	-

The result is identical with the well known parity assignments.

The above definition of internal parity reflexion loses its significance for particles without mechanical spin; yet a significance is usually attached to the internal parity of say  $\pi$ -mesons though this exhibits itself only when their interaction with nucleons is considered. I feel that one should conclude from this that boson fields contain internal variables which so far have not yet been recognised. In terms of these variables internal parity reflexion should describe the turning inside-out of a bosons as a continuous transformation. As a formal step in this direction we might assume that the Pauli matrices  $\varrho_k, \varrho'_k$  and  $\sigma_k, \sigma'_k$  entering by (2.5) the wave equation (2.9) have a physical meaning such that any representation can be chosen for them which is derived from (1.7) by unitary transformations. As in the case of the  $\Pi_l, \Pi'_l$  this involves angular spaces. For the  $\sigma_k, \sigma'_k$  the requirement is to some extent already satisfied by the form of the wave equation, containing them as  $(\sigma \partial)$  and  $(\sigma' \partial)$  only. A simultaneous unitary transformation of  $\sigma$  and  $\sigma'$  then is equivalent to a rotation of the ordinary  $x_k$ -frame; the angular coordinates connected with the  $\sigma$  are thus the angles in ordinary space. For the  $\varrho_k, \varrho'_k$  however, the requirement is not obviously satisfied because Lorentz transformations

lead to a specific kind of unimodular transformation which do not include our requirements. The simplest possible extension of the definition of the  $\varrho_k$  which would permit internal parity reflexion could be obtained by defining similar to (1.10),

$$\varrho_l = (\mathbf{a}(\varrho) \mathbf{w}_l), \quad \varrho'_l = (\mathbf{a}'(\varrho) \mathbf{w}_l) \quad (4.9)$$

where  $\mathbf{a}(\varrho)$ ,  $\mathbf{a}'(\varrho)$  are Pauli matrices of the form (1.7), and  $\mathbf{w}_l$  are three orthogonal unit vectors defined in terms of certain Eulerian angles. For our purpose we may choose in particular  $\mathbf{w}_2$  such that

$$\varrho_2 = a_2(\varrho), \quad \varrho'_2 = a'_2(\varrho) \quad (4.10)$$

which implies that  $\varrho_1$  and  $\varrho_3$  do not contain  $a_2$ . We may then define

$$R_2(\vartheta) = e^{i\vartheta \frac{\varrho_2 + \varrho'_2}{2}} = 1 + \left( \frac{\varrho_2 + \varrho'_2}{2} \right)^2 (\cos \vartheta - 1) + \left. \begin{aligned} &+ i \frac{\varrho_2 + \varrho'_2}{2} \sin \vartheta \end{aligned} \right\} \quad (4.11)$$

so that

$$R_2 = R_2(\pi) = -\varrho_2 \varrho'_2 \quad (4.12)$$

and

$$R_2\left(\frac{\pi}{2}\right) = \frac{1 - \varrho_2 \varrho'_2}{2} + i \frac{\varrho_2 + \varrho'_2}{2}. \quad (4.13)$$

Transformation by  $R_2(\vartheta)$  does not leave the wave equation invariant; invariance is obtained, however, by a simultaneous rotation of the  $\mathbf{w}_l$  around the  $\mathbf{w}_2$  axis. Rotation by  $180^\circ$  then becomes equivalent to a replacement of  $\partial_k$  by  $-\partial_k$  in a manner similar to the example discussed in § 1. The turning inside out process in the Maxwell case for instance leaves  $H_k$  and  $\phi_4$  unaltered, while  $E_k$  and  $\phi_k$  are rotated such that for  $\vartheta = 90^\circ$ ,  $E_k \rightarrow \phi_k$ ,  $\phi_k \rightarrow -E_k$  and for  $\vartheta = 180^\circ$ ,  $E_k \rightarrow -E_k$ ,  $\phi_k \rightarrow -\phi_k$ . It would be desirable to go closer into this process than has been possible by the present formal description.

Finally transformation by

$$P(\vartheta) = e^{i\frac{\vartheta}{2}(\varrho_2 \Pi_2 + \varrho'_2 \Pi'_2)} = 1 + \left( \frac{\varrho_2 \Pi_2 + \varrho'_2 \Pi'_2}{2} \right)^2 (\cos \vartheta - 1) + \left. \begin{aligned} &+ i \left( \frac{\varrho_2 \Pi_2 + \varrho'_2 \Pi'_2}{2} \right) \sin \vartheta \end{aligned} \right\} \quad (4.14)$$

should be mentioned. It leaves the wave equation invariant, and for  $\vartheta = 180^\circ$  becomes

$$P(\pi) = -\varrho_2 \varrho'_2 \Pi_2 \Pi'_2 = R_2 C_2 \quad (4.15)$$

i. e. combined charge and internal parity transformation.



### 5. Reality Conditions and Quantisation

The space time functions entering the wave functions in (2.27)–(2.30) were all assumed real. This statement is not invariant under unitary transformations and it was mentioned in § 2 that an invariant formulation is possible in terms of vanishing currents,

$$\overline{\Psi}(x) J_{kl} B_{\mu} \Psi(x) = 0 \quad (5.1)$$

where the  $J_{kl}$  represents the ten operators (cf. (2.36, 2.37))

$$J_{kl} = E_{kl}, \quad A_{kl}, \quad 1. \quad (5.2)$$

In (5.1) integration over all spin variables is assumed to be carried out so that these expressions depend on  $x_{\mu}$  only. Conditions (5.1) remain valid if  $\Psi$  is multiplied by a phase factor  $\exp(i \partial Q_s)$  or  $\exp(i \partial A_s)$  because transformation of any of the  $J_{kl}$  by these terms (e.g.  $\exp(-i \partial Q_s) J_{kl} \exp(i \partial Q_s)$ ) leads to a linear combination of the ten  $J_{kl}$ .

The quantisation of the space time functions contained in  $\Psi$  is closely connected with the reality conditions. To demonstrate this we consider first a wave function of a neutral spin zero particle,

$$\beta_k(5) \partial_k + \beta_4(5) \partial_4 + \kappa, \quad \psi(x) = 0. \quad (5.3)$$

Here  $\psi(x)$  has five real components  $\psi_{\beta}(x)$  which satisfy (use 2.20)

$$\left. \begin{aligned} \partial_k \psi_5 + \kappa \psi_k &= 0, & -i \partial_4 \psi_5 + \kappa \psi_4 &= 0, \\ \partial_k \psi_k + i \partial_4 \psi_4 + \kappa \psi_5 &= 0. \end{aligned} \right\} \quad (5.4)$$

Now if  $\overline{\psi}(x) = \psi^+(x) (1 - 2\beta_4^2)$ , then  $\overline{\psi}(x) \beta_{\mu}(5) \psi(x)$  is conserved. From (5.3) and (5.4) we then find

$$\left. \begin{aligned} \kappa (\overline{\psi}(x') \beta_{\mu}(5) \psi(x) + \overline{\psi}(x) \beta_{\mu}(5) \psi(x')) &= \\ = (\partial_{\mu} - \partial'_{\mu}) (\psi_5(x') \psi_5(x) - \psi_5(x) \psi_5(x')) &= \end{aligned} \right\} \quad (5.5)$$

For classical fields this expression vanishes. When  $\psi_5(x')$  and  $\psi_5(x)$  do not commute, however, then it vanishes only if  $x = x'$ . Conversely the condition that the left hand side of (5.5) should vanish for  $x = x'$  requires that all  $\psi_{\beta}$  be real apart from a common phase factor.

Now quantization of a real field  $\psi_5(x)$  requires (cf. PAULI<sup>4</sup>) eqns. (32) and (22))

$$\psi_5(x') \psi_5(x) - \psi_5(x) \psi_5(x') = [\psi_5(x'), \psi_5(x)] = i D(x - x', \kappa) \quad (5.6)$$

where  $D(x - x', \kappa)$  represents the universal  $D$  function for rest mass  $\kappa$ . Hence the condition

$$\kappa (\overline{\psi}(x') \beta_{\mu}(5) \psi(x) + \overline{\psi}(x) \beta_{\mu}(5) \psi(x')) = i (\partial'_{\mu} - \partial_{\mu}) D(x - x', \kappa) \quad (5.7)$$

expresses the reality as well as the quantization condition.

Complete quantisation of the wave function  $\Psi$  involves not only the space time coordinates  $x_\mu$  but also the new angular coordinates. At present quantization of the space-time functions only will be considered, and consequently the four fields (2.27)–(2.30) will be treated separately. Let  $\Psi_f(x)$  be one of these four fields ( $f = m, \pi, \kappa, \nu$ ) and let  $M_f$  be the respective eigenvalue of the mass operator, defined as the value entering the second order wave equation

$$\square \Psi_f - M_f^2 \Psi_f = 0 \quad (5.8)$$

i.e. (for  $f = m$ , (5.8) holds for  $E(x_\mu)$  and  $H(x_\mu)$  only)

$$M_m = 0, \quad M_\pi = 2C, \quad M_\kappa = 7C, \quad M_\nu = (7C(7C + 2c))^{\frac{1}{2}}. \quad (5.9)$$

We can then tentatively generalise (5.7) to

$$\left. \begin{aligned} \bar{\Psi}_f(x') \frac{1}{2} (MB_\mu + B_\mu M) J_{kl} \Psi_f(x) + \bar{\Psi}_f(x) \frac{1}{2} (MB_\mu + \\ + B_\mu M) J_{kl} \Psi_f(x') = i \delta_{kl} (\partial_\mu - \partial'_\mu) D(x - x', M_f). \end{aligned} \right\} \quad (5.10)$$

Integration over all spin variables on the left hand side is assumed. It will be remembered that  $J_{kl}$  commutes with both  $M$  and  $B_\mu$ . Also (cf. (2.46, 2.47))  $M(II)$  commutes with  $B_\mu$ , but  $M(\varrho, \sigma)$  does not do so in the case of particles with mechanical spin 1, as indicated in (3.13). The case  $k = l$  is assumed to comprise for  $J_{kk}$  not only the three operators  $E_{kk}$ , but also the unity operator 1. In a matrix representation, the three  $E_{kk}$  are given as diagonal matrices (3.6). Together with 1 they can be combined into four matrices containing zeros except for a single diagonal element each. For spin 0 particles ( $f = \pi$  or  $K$ ) the four ( $f = K$ ) or three ( $f = \pi$ ) conditions arising from (5.10) with  $k = l$  are then identical with (5.7) for each of the four (three)  $II$ -components, apart from signs. The remaining conditions (5.10),  $k \neq l$ , show that different  $II$ -components commute.

The case of spin 1 particles will be illustrated on the Maxwell field  $\Psi_m$ . This field has a single  $II$ -component  $\Sigma_4(II)$ . All  $J_{kl}$  conditions then either give  $0 = 0$  (if  $k \neq l$ ) or they become identical with  $J_{kk} = 1$ . Using (3.13) thus

$$\left. \begin{aligned} -c (\bar{\Psi}_m(x') \beta_\mu(10) \Psi_m(x) + \bar{\Psi}_m(x) \beta_\mu(10) \Psi_m(x')) = \\ = i (\partial_\mu - \partial'_\mu) D(x - x', 0). \end{aligned} \right\} \quad (5.11)$$

Inserting for  $\Psi_m$  from (2.27) yields for  $\mu = 1, 2, 3$ ,

$$\left. \begin{aligned} -c ([E_1(x'), \phi_4(x)] + [E_1(x), \phi_4(x')] - [H_2(x'), \phi_3(x)] - \\ - [H_2(x), \phi_3(x')] + [H_3(x'), \phi_2(x)] + [H_3(x), \phi_2(x')]) = \\ = i (\partial_1 - \partial'_1) D(x - x', 0); \quad \text{cycl.} \end{aligned} \right\} \quad (5.12)$$

and for  $\mu = 4$

$$\left. \begin{aligned} -i c \sum_{k=1}^3 ([E_k(x'), \phi_k(x)] + [E_k(x), \phi_k(x')]) = \\ = i (\partial_4 - \partial'_4) D(x - x', 0). \end{aligned} \right\} \quad (5.13)$$

Expressing  $E_k$  and  $H_k$  by  $\phi_\mu$  through the field equations (3.3) leads to four conditions containing the  $\phi_\mu$  and their derivatives only. They can be fulfilled if

$$[\phi_\mu(x'), \phi_\nu(x)] = -\frac{2}{3} i D(x - x', 0) \delta_{\mu\nu} \quad (5.14)$$

with

$$\delta_{\mu\nu} = 0 \text{ if } \mu \neq \nu; \quad \delta_{kk} = 1 \text{ if } k = 1, 2, 3; \quad \delta_{44} = -1. \quad (5.15)$$

Further investigation will have to show whether (5.14) is the only conclusion that can be drawn from (5.13) and whether (5.10) requires modification.

## 6. Discussion

The developments described in this paper are based on a criticism of the usual methods of dealing with reflexions. Arising from this it was postulated that all reflexions except coordinate replacements should be treated as continuous transformations. This required the replacements of four-vectors by operators according to (1.1) and led to the introduction of a new angular space (isospace). The application of these ideas to bosons is based on the identity (2.1) and is dominated by a very important difference between classical and quantum mechanics. In classical relativistic theory the momentum four-vector  $p_\mu$  is connected to the velocity four-vector  $v_\mu$  through the rest mass  $\kappa$  by  $p_\mu = \kappa v_\mu$ ; in quantum mechanics the two are defined independently (cf. (2.2), (2.3)). The quantum mechanical definition of  $v_\mu$  is, of course, closely correlated with Schrödingers Zitterbewegung which exists not only in the Dirac equation but also for bosons (it is longitudinal for spin zero bosons). The independence of definition of the  $p_\mu$  and  $v_\mu$  four-vectors has a profound influence on the wave equation when the replacements (2.6), (2.7) are made, replacing  $p_k v_k$  by  $\Pi_1 \Pi'_1 p_k v_k$ , and  $p_0 v_0$  by  $-(i \Pi_2) (i \Pi'_2) p_0 v_0$ . For clearly the  $\Pi_l, \Pi'_l$  occur only as products  $\Pi_l \Pi'_l$ . Now it was demonstrated in § 1 that  $\Pi_1 p_k$  (or  $\Pi'_1 v_k$ ) describes in terms of a space frame  $x_k$  both, a vector field  $p_k(v_k)$  and its reflected  $-p_k(-v_k)$ . The operator  $\Pi_1 \Pi'_1 p_k v_k$ , however, measures by  $\Pi_1 \Pi'_1$  only whether both vector fields  $p_k$  and  $v_k$  refer to the same sign  $+p_k$  and  $+v_k$  or  $-p_k$  and  $-v_k$  (we say they have equal reflexion status) or whether they refer to opposite signs,  $+p_k$  and  $-v_k$ , or  $-p_k$  and  $+v_k$ . A distinction between the individual vector fields  $+p_k$  and  $-p_k$ , or between  $+v_k$  and  $-v_k$  does thus not enter our boson wave

equation. The quantity that enters is the distinction as to whether the two have equal or unequal reflexion status. A corresponding result holds for the time components  $p_0, v_0$ . It will be noticed in particular that although  $(i\Pi_2)$  and  $(i\Pi'_2)$  are anti-hermitean, their product is hermitean and thus describes a measurable quantity. While a distinction between the two temporal directions in a single four-vector field is not a measurable quantity, in our theory, the distinction as to whether two four-vector fields have equal or opposite temporal direction (temporal reflexion status) is measurable in terms of the operator  $-\Pi_2\Pi'_2$ . It is of interest to note in this connection that the four function  $\Sigma_\sigma(\Pi)$ , (2.15), (2.16) which simultaneously diagonalise both  $\Pi_1\Pi'_1$  and  $\Pi_2\Pi'_2$  can be expressed in terms of the functions

$$\zeta_+ = \frac{1}{\sqrt{2}} (\xi(\Pi) + \eta(\Pi)), \quad \zeta_- = \frac{1}{\sqrt{2}} (\xi(\Pi) - \eta(\Pi)), \quad (6.1)$$

which have been used in (1.14). For

$$\left. \begin{aligned} \Sigma_1 &= -\frac{i}{\sqrt{2}} (\zeta_+ \zeta'_- + \zeta_- \zeta'_+), & \Sigma_2 &= -\frac{1}{\sqrt{2}} (\zeta_+ \zeta'_+ + \zeta_- \zeta'_-), \\ \Sigma_3 &= \frac{i}{\sqrt{2}} (\zeta_+ \zeta'_+ - \zeta_- \zeta'_-), & \Sigma_4 &= \frac{i}{\sqrt{2}} (\zeta_+ \zeta'_- - \zeta_- \zeta'_+). \end{aligned} \right\} \quad (6.2)$$

As a consequence of the introduction of the operators  $\Pi_i$  and  $\Pi'_i$  the wave equation corresponds now not only to the one classical identity  $p_k v_k - p_0 v_0 + \kappa = 0$  but to four such identities corresponding to replacements of  $p_k v_k$  and  $p_0 v_0$  by  $\pm p_k v_k$  and  $\pm p_0 v_0$  with all four combinations of the  $\pm$  signs. This is easily seen by using a diagonal matrix representation for  $\Pi_1\Pi'_1$  and  $\Pi_2\Pi'_2$ , based on table 1. Classically these combinations of signs would be impossible because of the classical identity  $p_\mu = \kappa v_\mu$  according to which replacement of  $p_k$  by  $-p_k$  entails a replacement of  $v_k$  by  $-v_k$ , leaving  $p_k v_k$  unaltered.

Discussion of the conservation laws derived from wave equation (2.9) has led to the definition of operators for isobaric spin  $T_i$  (2.38) and for electric charge  $Q_3 = R_3(\Pi_3 + \Pi'_3)/2$ , (2.35). It is of considerable interest to discuss the meaning of these operators in terms of the reflexion status of  $(p_k, v_k)$ , i.e. in terms of eigenstates of  $\Pi_1\Pi'_1$  and  $\Pi_2\Pi'_2$  as described above. We shall in particular deal with the electric charge operator  $Q_3$  and notice that in the matrix representation which diagonalises  $\Pi_1\Pi'_1$  and  $\Pi_2\Pi'_2$ , the operator  $(\Pi_3 + \Pi'_3)/2$  is represented by  $q_3$ , (2.44). It acts only on the first two  $\Pi$ -components of the wave function corresponding to the fact that there are only two non zero types of electric charge (positive and negative). Our attention can thus be restricted to these two;

in a formal way they are obtained by operating with  $Q_3^2$  on the wave equation. We then find the two equations,

$$\begin{pmatrix} -1 & \\ & 1 \end{pmatrix} \beta_k \partial_k + \begin{pmatrix} 1 & \\ & -1 \end{pmatrix} \beta_4 \partial_4 + \kappa, \quad \begin{pmatrix} \psi_1 \\ \psi_2 \end{pmatrix} = 0 \quad (6.3)$$

because the matrix representations of  $\Pi_1 \Pi'_1$  and  $\Pi_2 \Pi'_2$  are given by  $-\varepsilon_{11}$  and  $-\varepsilon_{22}$  (eqn. 3.6) respectively. Here  $\psi_1$  and  $\psi_2$  stand for  $\Phi_{1\beta}$ ,  $\Phi_{2\beta}$  in the case of  $\pi$ -meson, or for  $X_{1\beta}$ ,  $X_{2\beta}$  in the case of  $K$ -meson;  $\kappa$  represents the respective mass. The  $\pm \beta_k \partial_k$  and  $\pm \beta_4 \partial_4$  show that the charged components correspond for  $p_\mu$ ,  $v_\mu$  either ( $\psi_1$ ) to equal temporal and opposite spacial reflexion status (i.e. both  $p_0$ ,  $v_0$  forward or both backward;  $+p_k$  combined with  $-v_k$  or  $-p_k$  with  $+v_k$ ) or ( $\psi_2$ ) to opposite temporal and equal spacial reflexion status. The charge operator in terms of the two components  $\psi_1$ ,  $\psi_2$  is represented by

$$Q_3 \rightarrow R_3 \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix} \quad (6.4)$$

as obtained from (2.35) and (2.44). It can be brought to principal axes by unitary transformation by

$$G = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} R_2 & iR_1 \\ R_2 & -iR_1 \end{pmatrix}, \quad G Q_3 G^{-1} = \begin{pmatrix} -1 & \\ & 1 \end{pmatrix} \quad (6.5)$$

which combines  $\psi_1$  and  $\psi_2$  into ( $\psi_1$  and  $\psi_2$  are real)

$$\left. \begin{aligned} G \begin{pmatrix} \psi_1 \\ \psi_2 \end{pmatrix} &= \begin{pmatrix} \psi \\ \psi^* \end{pmatrix}, & \psi &= R_2 \psi_1 + i R_1 \psi_2 = R_2 (\psi_1 + i R_3 \psi_2) \\ & & \psi^* &= R_2 \psi_1 - i R_1 \psi_2 \end{aligned} \right\} \quad (6.6)$$

where  $\psi$ ,  $\psi^*$  satisfy the conventional Kemmer equation  $\beta_\mu \partial_\mu + \kappa$ ,  $\psi = 0$  and its conjugate complex.

In our theory, therefore, a state with definite electric charge is described by a superposition of a wave function  $\psi_1$  having equal temporal and opposite spacial reflexion status of  $p_\mu$ ,  $v_\mu$  and a wave function  $R_3 \psi_2$  having the opposite temporal and equal spacial reflexion status (combined with an internal space-time reflexion by  $R_3$ ). In fact, electric charge is defined as the operator  $Q_3$  causing an oscillation between these two reflexion states  $\psi_1$ ,  $\psi_2$ . It is, therefore closely connected with space time reflexions.

At this point it seems worth pointing out that the four-current based on  $\beta_\mu$  vanishes identically in view of the reality conditions, while currents based on  $v_\mu = (i \Pi'_1 \beta_k, -\Pi_2 \beta_4)$  are not conserved. Conserved non vanishing currents depend, of course, on  $v_\mu$  but involve other operators like  $Q_3$ ,  $T_3$  as well. The electric current density (space component) for instance is from (2.32) and (2.10) obtained as  $\bar{\Psi}(x) Q_3 \Pi_1 \Pi'_1 i \beta_k \Psi(x) =$



$= \bar{\Psi}(x) Q_3 \Pi_1 v_k \Psi(x)$ . We notice (i) that this current contains  $v_k = i \Pi'_1 \beta_k$  only in the form  $\Pi_1 v_k = i \Pi_1 \Pi'_1 \beta_k$  and thus depends on  $\Pi_1 \Pi'_1$  and not on  $\Pi'_1$  alone. Secondly, it refers to a specific quantity  $Q_3$  or  $T_3$  which it carries. Similar remarks hold for the relation of the momentum  $P_\mu = i \int \theta_{4\mu} d^3x$  to the operator  $p_\mu$ .

Definition of the electric charge operator by  $Q_3$  leads to the question of why it is that we choose the third component of  $\mathbf{Q}$  for it. We note, of course, the invariance of the  $\Pi_l, \Pi'_l$  under rotations of the external frame in isospace, but no compelling reason has been given to use the third and not another component. A modification of the wave equation (2.9) can be given which does in fact lead to the desired result, namely replacement of (2.9) by

$$B_\mu \partial_\mu + \Pi_3 \Pi'_3 M, \quad \Psi = 0. \quad (6.7)$$

Clearly only  $Q_3$  and  $T_3$ , but not  $Q_1, Q_2, T_1, T_2$ , lead now to conserved currents. It will be noticed that the energy momentum tensor  $\theta_{\mu\nu}$  defined in (3.14) does not require modification. For  $\partial_\nu \theta_{\mu\nu} = 0$  holds even when (2.9) is replaced by (6.7); on the other hand  $-\theta_{44}$  remains positive, provided the constants  $C$  and  $c$  entering the operator  $M$  are positive. The reality conditions also remain unaltered.

The solutions of the wave equation involved three pairs of Pauli spin operators namely  $\Pi_l, \Pi'_l; \varrho_l, \varrho'_l$  and  $\sigma_l, \sigma'_l$ . Furthermore, in the case of the  $\Pi_l, \Pi'_l$ , an orbital operator  $I$  was introduced. It was then postulated that  $\Psi$  should be antisymmetric under exchange of all pair variables. This led to two types of solutions depending on whether the eigenvalue of  $I^2$  was 0 or 1. In the former case an isobaric spin triplet and a singlet results. The triplet relates to mechanical spin 0 particles ( $\pi$ -mesons) and the singlet to spin particles with zero mass, i.e. it results in the Maxwell equation. The case  $I^2 = 1$  leads to four isobaric spin states both with  $T_3 = \pm 1/2$  as required by  $K$ -mesons. This case yields besides  $K$ -mesons (mechanical spin 0) another two isobaric doublets with mechanical spin 1 and a larger mass than that of  $K$ -mesons ( $\nu$ -particles).

The operator  $I$  is closely connected with the orbital angular momentum in isospace around the 3-axis (the figure axis). Like  $\Pi_3$  and  $\Pi'_3$ ,  $I$  is invariant under rotation in isospace. The definition of an isobaric spin vector  $\mathbf{T}$ , such that  $\mathbf{T} \times \mathbf{T} = i \mathbf{T}$  is satisfied was possible only for the eigenvalues 0 and 1 of  $I^2$ . The physical meaning of this restriction is not clear to me at the moment.

The mass operator  $M$  was introduced such that solutions with different isobaric spin have different rest mass. A very simple form of  $M$  led to nearly the correct mass ratio of  $\pi$ - and  $K$ -mesons. This form of  $M$  has not been derived, however, in a compelling way. Nevertheless, already at this

stage introduction of the  $M$ -operator demonstrates an attitude towards an interpretation of rest mass which is very different from one which regards this quantity as resulting from field self energies. If this attitude is correct then interactions should be formulated in terms of an (improved) mass operator.

*Note added in proof*

1. By replacing in wave equation (2.9) the Kemmer operators  $\beta_\mu$  by Dirac operators, the wave equation for  $\pi$ -mesons based on the symmetric  $\Sigma_e(\Pi)$  functions leads to the wave equation for the electron-neutrino field provided  $M = m q_3^2$  is used. The wave function has then  $3 \times 4 = 12$  components which with an appropriate reality condition provides 6 complex components as required by the 2-component neutrino, 4-component electron theory. Expression (2.35) can still be used for the electric charge operator  $Q_3$ , though  $R_3$  is now a different operator, such that isospin can no longer be defined because (2.40) can not be fulfilled. This operator  $Q_3$  and an appropriate operator for neutrino charge provide automatically the expressions required by hole theory. Electric charge conjugation is still given by (4.11) but parity reflexion can not be separated from neutrino charge conjugation.

2. Careful investigation reveals two types of Lorentz transformations: one which retains complete symmetry in isospace, leaving all  $Q_k$  (and  $T_k$ ) invariant; and a second which leaves only  $Q_3$  invariant and transforms charged and uncharged fields independent of each other.

### References

- <sup>1)</sup> H. FRÖHLICH, Proc. Roy. Soc. A 257, 147 (1960); 257, 283 (1960).
- <sup>2)</sup> N. KEMMER, Proc. Roy. Soc. A. 173, 91 (1939).
- <sup>3)</sup> W. HEISENBERG, Z. Phys. 77, 1 (1932).
- <sup>4)</sup> W. PAULI, Rev. Mod. Phys. 13, 203 (1941).

# On the Theory of Particles of Spin 1

by N. Kemmer

Tait Institute of Mathematical Physics, University of Edinburgh

*Zusammenfassung.* Verschiedene Formulierungen der Theorie des Vektormesons werden diskutiert. Es wird gezeigt, dass die Quellenterme, mit denen ein Vektormeson gekoppelt werden kann, im allgemeinen verschieden sind von den Termen, die man naiverweise als Quellen identifizieren würde. Gewöhnlich enthalten die wahren Quellen Ableitungen der Feldoperatoren, aber in Sonderfällen, zum Beispiel in der Theorie von YANG und MILLS, fallen die Ableitungen fort. Ein solches Verhalten ist für die Renormierung der Theorie günstig.

## 1. Introduction

The quantum field theory of particles of spin one originated around 1937 and for a time it was widely used in attempts to construct a meson theory of nuclear forces. The interest in spin one particles naturally diminished when the pseudoscalar nature of the pion was established. It also became clear that spin 1 theories, unlike those of spins 0 and  $1/2$ , presented grave difficulties to renormalization programmes. It then seemed at least a fortunate accident, if not part of a deeper design that, with the exception of the photon, particles of spin 1 seemed to form no part of nature's scheme.

Recently, however, attractive developments of the theory of weak interactions have been put forward which are based on the idea of a heavy boson providing an intermediate link in  $\beta$ -decay processes<sup>1)2)</sup>. The symmetries of these processes indicate that if such intermediates exist they should have spin 1. (See, however, FRONSDAL and GLASHOW<sup>3)</sup>.)

If these ideas are correct, we can no longer shirk facing the difficulties presented by spin 1 theory. Already it has been pointed out that for certain special interactions renormalization difficulties are less grave than was originally thought<sup>4)</sup>. However, spin 1 theory is notorious for the variety of the equivalent, or nearly equivalent ways in which it is possible to present it, and there appears to the writer to be a certain lack of clarity, if not confusion, in what is being and has been said about these particles. It is the aim of this article to present an account of spin 1 theory which may illuminate some of the questions recently discussed and which in particular subjects the problem of renormalization to a rescrutiny. This study leads to the establishment of certain fairly simple general criteria of renormalizability. The theory of YANG and MILLS is used as the one known concrete example of a theory, for which such criteria hold.

## 2. Different Formulations of the Theory of Spin 1 Particles

At a very early stage it was pointed out that a formulation of the theory of free particles of mass  $m$  and spin 1 was provided by Proca's equations\*)\*\*) )

$$\left. \begin{aligned} \partial_\mu A_\nu - \partial_\nu A_\mu - m F_{\mu\nu} &= 0 \\ \partial_\nu F_{\mu\nu} - mA_\mu &= 0 \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

In this formulation the field associated with the particle is described by ten components, the  $A_\mu$  which form a four-vector and the  $F_{\mu\nu}$ , an anti-symmetric tensor, the two quantities appearing on a completely equal footing. By analogy with the electromagnetic field most authors have preferred to use the quantities

$$a_\mu = m^{-\frac{1}{2}} A_\mu \text{ and } f_{\mu\nu} = m^{\frac{1}{2}} F_{\mu\nu},$$

so as to give the equations the form

$$\left. \begin{aligned} \partial_\nu f_{\mu\nu} - m^2 a_\mu &= 0 \\ f_{\mu\nu} &= \partial_\mu a_\nu - \partial_\nu a_\mu \end{aligned} \right\} \quad (1')$$

but, although (for  $m \neq 0$ ) this transformation is trivial, the original form seems slightly preferable for the following analysis.

The free particle equations (1) have as immediate consequences the relations

$$\partial_\lambda F_{\mu\nu} + \partial_\mu F_{\nu\lambda} + \partial_\nu F_{\lambda\mu} = 0 \quad (2a)$$

$$\partial_\mu A_\mu = 0 \quad (2b)$$

The first line of (2) represents four component equations of which, however, only three are essentially independent, so that altogether (2) cuts down the 10 field components to six independent ones, just the number necessary to describe a particle capable of three states of polarization.

In the more fashionable formalism the same situation is described somewhat differently. There the variables are in the first place usually normalised as in equations (1), but in addition a more substantial difference in emphasis is made by replacing (1) by the single second-order equation

$$\partial_\nu (\partial_\mu A_\nu - \partial_\nu A_\mu) - m^2 A_\mu = 0 \quad (3)$$

\*) A completely equivalent formulation of this theory is provided by the equation

$$(\partial_\mu \beta_\mu + m) \psi = 0$$

where the  $\beta_\mu$  are  $10 \times 10$  matrices satisfying the Petiau-Duffin commutation rules

$$\beta_\lambda \beta_\mu \beta_\nu + \beta_\nu \beta_\mu \beta_\lambda = \delta_{\lambda\mu} \beta_\nu + \delta_{\mu\nu} \beta_\lambda,$$

but we shall not make use of this formulation here.

\*\*) We use the metric in which

$$a^2 = a_\nu a_\nu = a_0^2 - \mathbf{a} \cdot \mathbf{a}.$$

with the field  $F_{\mu\nu}$  eliminated by means of the second set of equations of (1). If the field  $F_{\mu\nu}$  is used at all, it is thought of as the four-dimensional curl of  $A_\mu$  by definition:

$$F_{\mu\nu} \equiv \frac{1}{m} (\partial_\mu A_\nu - \partial_\nu A_\mu). \quad (4)$$

While for the free Proca field the change from (1) to (3) and (4) is a trifling matter, we shall see below that an interesting difference in the approach to the problem of interacting fields results from it.

It should also be noted that a corresponding change of emphasis in the direction opposite to the conventional one is just as legitimate. We may, if we wish, look on the Proca scheme as given by the equations

$$\partial_\mu (\partial_\rho F_{\nu\rho}) - \partial_\nu (\partial_\rho F_{\mu\rho}) - m^2 F_{\mu\nu} = 0 \quad (5)$$

which are obtained by eliminating the vector  $A_\mu$  from (1). On this view  $A_\mu$  would be defined by

$$A_\mu \equiv \frac{1}{m} \partial_\nu F_{\mu\nu}. \quad (6)$$

When scheme (1) is used, equation (3) is often thought of as composed of the equations

$$(\partial^2 + m^2) A_\mu = 0 \quad (7)$$

and

$$\partial_\mu A_\mu = 0 \quad (8)$$

the latter of which is a consequence of (4), but not of (7). Together, equations (7) and (8) are equivalent to (4) and they are particularly convenient for one familiar version of the quantization of spin 1 equations, in which  $\partial_\mu A_\mu$  is treated as a subsidiary condition restricting the independence of the four components of  $A_\mu$  allowed by (7).

This attitude is equally possible if one chooses the  $F_{\mu\nu}$  field as independent variables, for equation (5) may be replaced by

$$(\partial^2 + m^2) F_{\mu\nu} = 0 \quad (9)$$

and

$$\partial_\lambda F_{\mu\nu} + \partial_\mu F_{\nu\lambda} + \partial_\nu F_{\lambda\mu} = 0 \quad (10)$$

and the relation between (5), (9) and (10) is precisely the same as that between (4), (7) and (8). One may, if one so chooses, regard (9) as the equation of motion and (10) as a subsidiary condition.

The reason these variations of approach deserve some attention becomes apparent when one goes over to the study of the Proca field in interaction with external sources or other fields. According to which approach is chosen, such sources will be defined differently and as a result confusion may arise. Let us discuss the cases one by one.



In a theory based on equations (1), one would naturally introduce interactions with other fields by writing

$$\left. \begin{aligned} \partial_\mu A_\nu - \partial_\nu A_\mu - m F_{\mu\nu} &= m_{\mu\nu} \\ \partial_\nu F_{\mu\nu} - m A_\mu &= j_\mu \end{aligned} \right\} \quad (11)$$

and the two types of 'sources'  $j_\mu$  and  $m_{\mu\nu}$  appear on equal footing. For instance, in discussing renormalization, as we shall do below, there is no reason to expect more divergent behaviour from  $m_{\mu\nu}$  sources than from  $j_\mu$  of similar structure; on the other hand, the same theory written in the form (5) would take on the form

$$(\partial^2 + m^2) A_\mu = s_\mu \quad (12)$$

where

$$-s_\mu = m j_\mu + \partial_\nu m_{\mu\nu}$$

and it would then *appear* that the part of the source involving  $m_{\mu\nu}$  must necessarily have the characteristics of a derivative coupling. That in general this appearance has little physical meaning can be seen, for instance, by writing the theory instead in the form (9) which becomes

$$(\partial^2 + m^2) F_{\mu\nu} = q_{\mu\nu} \quad (13)$$

where

$$-q_{\mu\nu} = m m_{\mu\nu} + \partial_\mu j_\nu - \partial_\nu j_\mu$$

so that now the  $j_\mu$  coupling appears to be of the derivative kind. These general considerations will form the background of the following discussion of two separate, but related problems.

### 3. The Independent Degrees of Freedom of the Spin 1 Field

We have seen that the equations of non-interacting spin 1 particles include, besides the equation of motion proper, the equations (2), which according to the particular formulation of the theory may appear either all as consequences of the equations of motion, or partly as such consequences and partly as subsidiary conditions. What happens to these relations in the presence of sources? Clearly they will in general no longer hold. In the linear (Proca) formulation the first set of equations (2) will only hold if

$$\partial_\lambda m_{\mu\nu} + \partial_\mu m_{\nu\lambda} + \partial_\nu m_{\lambda\mu} = 0 \quad (14)$$

and the second only if

$$\partial_\mu j_\mu = 0 \quad (15)$$

In the conventional second order formulation, (2b) will be violated unless  $\partial_\mu s_\mu = 0$ , which is the same as (15), and in the 'inverted' second order scheme (2a) is violated unless  $\partial_\lambda q_{\mu\nu} + \partial_\mu q_{\nu\lambda} + \partial_\nu q_{\lambda\mu} = 0$ , which evidently reduces to (14).

Now it was already mentioned that the conditions (2) are necessary to guarantee that the field should have only the degrees of freedom charac-

teristic of a spin 1 particle. Does this mean that in interactions violating either (14) or (15) additional degrees of freedom of the field, latent for a free field, are excited? This point of view has been expressed occasionally<sup>5)</sup>, at least in respect of (15), though due to the particular choice of formulation the equivalent role of (14) has apparently not been noted. This apparent difference in the conclusions with regard to two precisely similar situations shows that a somewhat deeper analysis is needed.

One is here concerned with the total time development of the fields—in quantal terms with the Heisenberg picture—and therefore one should state the field equations in a canonical form. In the most familiar presentations such a canonical form is usually given only in momentum space and to state the corresponding equations in coordinate space is a little troublesome and unless one employs Schwinger's<sup>6)</sup> general scheme, cannot be done simply in terms of covariant quantities only, although the theory is of course covariant as a whole. In these circumstances it is appropriate to make the otherwise retrograde step of writing Proca's equation in a three-dimensional vector notation. Using symbols that stress the formal similarity to electromagnetism, we put

$$F_{0i} = E_i, \quad \frac{1}{2}\epsilon_{ijk} F_{jk} = B_i, \quad A_0 = \phi, \quad m_{0i} = P_i, \quad \frac{1}{2}\epsilon_{ijk} m_{jk} = M_i, \quad j_0 = \rho$$

Then equations (1) become

$$\left. \begin{aligned} -\nabla\phi - \dot{A} - mE &= P \\ \nabla_\wedge A - mB &= M \\ \nabla_\wedge B + \dot{E} - mA &= j \\ -\nabla \cdot E - m\phi &= \rho \end{aligned} \right\} \quad (16)$$

while the consequent equations (2) appear as

$$\left. \begin{aligned} \nabla_\wedge E + \dot{B} &= 0 \\ \nabla \cdot B &= 0 \\ \nabla \cdot A + \dot{\phi} &= 0 \end{aligned} \right\} \quad (17)$$

The scheme (17) may be derived by variation of the Lagrangian<sup>\*)</sup>

$$\left. \begin{aligned} L &= \frac{m}{2} (E^2 - B^2) + \frac{m}{2} (A^2 - \phi^2) \\ &+ \frac{1}{2} \dot{A} \cdot E - \frac{1}{2} A \cdot \dot{E} + \nabla\phi \cdot E + \nabla_\wedge B \cdot A \\ &+ P \cdot E - M \cdot B + j \cdot A - \rho\phi. \end{aligned} \right\} \quad (18)$$

\*) We assume for simplicity that the sources are not themselves functions of the field variables, but only slight modification of the argument is needed for the more general case.

but in this form  $L$  is not directly suitable for bringing into canonical form, in the first place because the variables  $\phi$  and  $\mathbf{B}$  enter without their time derivatives. However, these variables may be eliminated by using the second and fourth equations of (16).

We then get

$$L = \left. \begin{aligned} & -\frac{m}{2} (\mathbf{E}^2 + \mathbf{A}^2) + \frac{1}{2m} ((\nabla \cdot \mathbf{E})^2 + (\nabla \wedge \mathbf{A})^2) + \frac{1}{2} \dot{\mathbf{A}} \cdot \mathbf{E} - \frac{1}{2} \mathbf{A} \cdot \dot{\mathbf{E}} \\ & + \mathbf{j} \cdot \mathbf{A} + \mathbf{P} \cdot \mathbf{E} - \frac{1}{m} \mathbf{M} \cdot \nabla \wedge \mathbf{A} + \frac{1}{m} \varrho \nabla \cdot \mathbf{E} + \frac{1}{2m} \mathbf{M}^2 + \frac{1}{2m} \varrho^2 \end{aligned} \right\} \quad (19)$$

Here we have dropped a spatial divergence; the last two terms may also be disregarded in this discussion as they only influence the equations of motion of the sources\*\*).

From this Lagrangian, equations (16) are easily derivable, in the sense that the symbols  $\mathbf{B}$  and  $\phi$  are considered as given by their values from (16) by *definition*.

Even in this form  $L$  is not yet ready for a canonical formalism. The next step is to split the two fields  $\mathbf{A}$  and  $\mathbf{E}$  into (spatially) transverse and longitudinal parts.

For any 3-dimensional vector field  $\mathbf{v}$  we make the (spatially\*\*\*) non-local transformation

$$\mathbf{v} = \mathbf{v}^{(1)} + \mathbf{v}^{(2)}; \quad \nabla \cdot \mathbf{v}^{(1)} = 0 \quad \nabla \wedge \mathbf{v}^{(2)} = 0 \quad (20)$$

In this notation we find from (16) that

$$\left. \begin{aligned} -\dot{\mathbf{A}}^{(1)} - m\mathbf{E}^{(1)} &= \mathbf{P}^{(1)} \\ \dot{\mathbf{E}}^{(2)} - m\mathbf{A}^{(2)} &= \mathbf{j}^{(2)} \end{aligned} \right\} \quad (21)$$

and these relations may be used to eliminate  $\mathbf{E}^{(1)}$  and  $\mathbf{A}^{(2)}$  from (19). In this way we find

$$L = \left. \begin{aligned} & -\frac{1}{2m} (\dot{\mathbf{A}}^{(1)2} + \dot{\mathbf{E}}^{(2)2}) + \frac{1}{2m} ((\nabla \wedge \mathbf{A}^{(1)})^2 + (\nabla \cdot \mathbf{E}^{(2)})^2) \\ & + \frac{m}{2} (\mathbf{A}^{(1)2} + \mathbf{E}^{(2)2}) \\ & + \mathbf{A}^{(1)} \cdot (\mathbf{j}^{(1)} + \frac{1}{m} \dot{\mathbf{P}}^{(1)} - \frac{1}{m} \nabla \wedge \mathbf{M}) \\ & + \mathbf{E}^{(2)} \cdot (\mathbf{P}^{(2)} - \frac{1}{m} \dot{\mathbf{j}}^{(2)} - \frac{1}{m} \nabla \varrho) \\ & - \frac{1}{2m} (\mathbf{P}^{(1)2} - \mathbf{M}^2 + \mathbf{j}^{(2)2} - \varrho^2) \end{aligned} \right\} \quad (22)$$

\*\*) As FRONSDAL and GLASHOW<sup>3)</sup> point out, the form of these terms is important for calculating the form of the interaction between the source fields.

\*\*\*) This splitting must be distinguished from the four-dimensional split discussed, e. g. by GLASHOW<sup>4)</sup>.

Here again we have discarded a spatial divergence, and now also a total time derivative. The last term is again of no importance to the equations of motion we are considering. From this Lagrangian the required equations of motion follow again, but now clearly in a form which shows that the variables canonically conjugate to  $A^{(1)}$  and  $E^{(2)}$  respectively are  $-\dot{A}^{(1)}/m$  and  $-\dot{E}^{(2)}/m$ , so that the transition to Hamiltonian form is immediate.

We are particularly interested in the commutation rules for the canonical variables. In writing them down we must ensure that they are compatible with the conditions (20) on  $A^{(1)}$  and  $E^{(2)}$ . To ensure this one may put

$$\left. \begin{aligned} [A_m^{(1)}(\mathbf{x}), A_n^{(1)}(\mathbf{y})] &= \frac{m}{i} \left[ (\delta_{mn} - \frac{\partial_m \partial_n}{\nabla^2}) \delta(\mathbf{x} - \mathbf{y}) \right] \\ [E_m^{(2)}(\mathbf{x}), E_n^{(2)}(\mathbf{y})] &= \frac{m}{i} \frac{\partial_m \partial_n}{\nabla^2} \delta(\mathbf{x} - \mathbf{y}) \end{aligned} \right\} \quad (23)$$

(all other pairs commuting).

To eliminate the spatially non-local operators on the right hand sides, we may go back to the total fields  $A_m$  and  $E_n$  by using (21). This gives

$$[A_m(\mathbf{x}) + \frac{1}{m} j_m^{(2)}(\mathbf{x}), E_n(\mathbf{y}) + \frac{1}{m} P_n^{(1)}(\mathbf{y})] = \frac{1}{i} \delta(\mathbf{x} - \mathbf{y}) \delta_{mn} \quad (24)$$

The quantities

$$\hat{A} \equiv A + \frac{1}{m} \mathbf{j}^{(2)} \quad \text{and} \quad \hat{E} \equiv E + \frac{1}{m} \mathbf{P}^{(1)}$$

are thus the canonical variables in terms of which the field equations in the Heisenberg representation should be discussed. Going right back to the form (16) of Proca's equations, with the use of the further convenient definitions  $m\hat{B} \equiv \nabla_\wedge \hat{A}$ ,  $m\hat{\phi} \equiv -\nabla \cdot \hat{E}$ , we see that their canonical form is

$$\left. \begin{aligned} -\nabla \hat{\phi} - \dot{\hat{A}} - m\hat{E} &= \mathbf{P}^{(2)} - \frac{1}{m} \mathbf{j}^{(2)} - \frac{1}{m} \nabla \varrho \\ \nabla_\wedge \hat{A} - m\hat{B} &= 0 \\ -\nabla_\wedge \hat{B} + \dot{\hat{E}} - m\hat{A} &= \mathbf{j}^{(1)} + \frac{1}{m} \mathbf{P}^{(1)} - \frac{1}{m} \nabla_\wedge \mathbf{M} \\ -\nabla \cdot \hat{E} - m\hat{\phi} &= 0 \end{aligned} \right\} \quad (25)$$

It is now apparent that the sources entering the *canonical* equations automatically satisfy conditions (14) and (15). There is therefore now no question of spurious degrees of freedom being present in the field, whatever the coupling. What is not made clear in the usual treatment is that the sources to which the Proca field can couple are not those one would expect from naively writing down the equations.

The appearance of the equations (25) is of course not covariant; nevertheless they are equivalent to the original equations. This is evidently so because the definitions of the quantities  $\hat{A}$ ,  $\hat{E}$  etc. are themselves not covariant. It should perhaps be re-emphasized that the transformation to the new variables is non-local, but only in a three-dimensional spatial sense, so that it presents no obstacles to this discussion based on the Heisenberg representation.

### 3. Renormalization of Spin 1 Theories

To discuss the renormalization of the theory, let us return to equations (11) as our starting point. We obtain by simple calculation the second order equations

$$\left. \begin{aligned} -(\partial^2 + m^2) A_\mu &= m j_\mu + \partial_\nu m_{\mu\nu} + \frac{1}{m} \partial_\mu \partial_{\nu j\nu} \\ -(\partial^2 + m^2) F_{\mu\nu} &= m m_{\mu\nu} + \partial_\mu j_\nu - \partial_\nu j_\mu + \frac{1}{m} \partial_\rho (\partial_\mu m_{\nu\rho} + \partial_\nu m_{\rho\mu} + \partial_\rho m_{\mu\nu}) \end{aligned} \right\} \quad (26)$$

These equations may evidently also be symbolically written as

$$\begin{aligned} A_\mu &= -\frac{m}{\partial^2 + m^2} \left( \delta_{\mu\nu} + \frac{\partial_\mu \partial_\nu}{m^2} \right) (j_\nu + \frac{1}{m} \partial_\rho m_{\nu\rho}) \\ F_{\mu\nu} &= -\frac{m}{\partial^2 + m^2} \left[ \delta_{\mu\rho} \delta_{\nu\sigma} + \frac{1}{m^2} (\partial_\mu \partial_\sigma \delta_{\nu\rho} + \partial_\nu \partial_\rho \delta_{\mu\sigma} + \partial^2 \delta_{\mu\rho} \delta_{\nu\sigma}) \right] \times \\ &\quad \left[ m_{\rho\sigma} + \frac{1}{m} (\partial_\rho j_\sigma - \partial_\sigma j_\rho) \right]. \end{aligned} \quad (27)$$

and hence we see that a theory in which the  $F_{\mu\nu}$  are treated as an independent set of variables involves as Green's functions the well known expression

$$\frac{\mathfrak{P}_{\mu\nu}}{(\partial^2 + m^2)} \equiv \frac{m}{(\partial^2 + m^2)} \left( \delta_{\mu\nu} + \frac{\partial_\mu \partial_\nu}{m^2} \right)$$

for the  $A_\mu$  field and the less familiar Green's function

$$\frac{\mathfrak{P}_{\mu\nu, \rho\sigma}}{(\partial^2 + m^2)} \equiv -\frac{m}{(\partial^2 + m^2)} \left[ \delta_{\mu\rho} \delta_{\nu\sigma} + \frac{1}{m^2} (\partial_\mu \partial_\sigma \delta_{\nu\rho} + \partial_\nu \partial_\rho \delta_{\mu\sigma} + \partial^2 \delta_{\mu\rho} \delta_{\nu\sigma}) \right] \quad (28)$$

For the  $F_{\mu\nu}$  field\*). In an approach that does not treat the  $F_{\mu\nu}$  as independent variables, which therefore does not include  $m_{\mu\nu}$  sources explicitly, the term involving  $1/m^2$  in  $\mathfrak{P}_{\mu\nu, \rho\sigma}$  drops out. In our approach, however, it must clearly play as important a part as the corresponding term involving  $1/m^2$  in  $\mathfrak{P}_{\mu\nu}$ .

In the usual procedure of discussing renormalization in terms of a series expansion of the S-matrix these Green functions reappear as the

\*) We omit here the antisymmetrization of the GREEN's function with respect to  $\mu$  and  $\nu$  and with respect to  $\rho$  and  $\sigma$ .



propagators associated with the internal lines, and in them the terms in  $1/m^2$  are responsible for the fact that spin 1 theories are in general not renormalizable.

It has recently been pointed out<sup>4)</sup> that in the special case when the term  $\partial_\mu \partial_\nu / m^2$  in  $\mathfrak{P}_{\mu\nu}$  has no effect, i.e. if in terms of the current  $s_\mu$  of equation (12) we have  $\partial_\mu s_\mu = 0$  (a conserved current), the theory is renormalizable provided only  $s_\mu$  satisfies certain conditions of simplicity. If, for the sake of brevity, we confine ourselves to source functions constructed from boson fields the renormalizability conditions on a theory with conserved current are that any term in  $s_\mu$  should involve (i) the products of no more than three boson field operators, (ii) if it involves the derivative of one field operator this may be multiplied by at most one non-differentiated field operator, and (iii) not more than one derivative of a field shall occur in any term.

In this context one should note that the condition of current conservation is necessary simply because the offending term in  $\mathfrak{P}_{\mu\nu}$  contains two derivatives; the quantity that determines renormalizability is in fact not  $s_\mu$  but  $\mathfrak{P}_{\mu\nu} s_\nu$ . It is therefore clear that the condition of current conservation may be *relaxed*, provided that, by virtue of the equations of motion  $\mathfrak{P}_{\mu\nu} s_\nu$  rather than  $s_\mu$  itself satisfies conditions (i), (ii) and (iii). This is precisely the situation in the case of 'partial current conservation' as defined by GLASHOW.\*\*)

The above discussion is but a restatement of known results. It is based on the conventional statement of spin 1 theory. If however we choose the linearized form of the theory the statement of renormalizability conditions appears in a somewhat different form. We have then to consider the sources  $j_\mu$  and  $m_{\mu\nu}$  separately. Apparently this is a complication, but it brings us the gain that now the appearance of the  $F_{\mu\nu}$  field in the sources need not be classed as an appearance of derivatives. We then find that a theory of Proca particles is renormalizable if

$$\partial_\mu j_\mu = 0 \quad \text{and} \quad \partial_\lambda m_{\mu\nu} + \partial_\mu m_{\nu\lambda} + \partial_\nu m_{\lambda\mu} = 0,$$

or if at least the quantities  $\mathfrak{P}_{\mu\nu} j_\nu$  and  $\mathfrak{P}_{\mu\nu, \rho\sigma} m_{\rho\sigma}$  involve:

- (i)' no terms with more than three boson field operators (among which both the  $A_\mu$  and the  $F_{\mu\nu}$  may be included),
- (ii)' only one derivative term multiplied by no more than one non-differentiated field operator (defined as above), and
- (iii)' not more than one derivative of a field operator which is not re-expressible in terms of the  $A_\mu$  and  $F_{\mu\nu}$ .

It is also clear from our previous discussion that the 'inverted' scheme may equally well be used for the discussion of renormalizability. With it

\*\*) Recently SALAM has stated objections to GLASHOW's treatment.

conditions similar to our first three must clearly be imposed on  $\mathfrak{P}_{\mu\nu,\rho\sigma} q_{\rho\sigma}$  with  $q_{\rho\sigma}$  defined by equation (13) and with the  $F_{\mu\nu}$  now functioning as the sole non-derivative field operators.

#### 4. The Yang Mills Theory

We shall now discuss briefly the renormalizability of the Yang-Mills<sup>7)</sup> theory in terms of our criteria for the linearized approach. This theory involves an isobaric triplet of fields  $A_\mu^i$  and  $F_{\mu\nu}^i$  ( $i = 1, 2, 3$ ) and a corresponding isobaric triplet of currents

$$j_\mu^i = g (A_\nu^j F_{\mu\nu}^k - A_\nu^k F_{\mu\nu}^j)$$

and

$$m_{\mu\nu}^i = g (A_\mu^j A_\nu^k - A_\mu^k A_\nu^j),$$

( $i, j, k$  cyclic). We take all three fields to have the same *non-vanishing* mass  $m$ . It is then readily calculated from the equations of motion that  $\partial_\mu j_\mu^i = 0$ . On the other hand we find

$$\left. \begin{aligned} \partial_\lambda m_{\mu\nu}^i + \partial_\mu m_{\nu\lambda}^i + \partial_\nu m_{\lambda\mu}^i = g m (F_{\lambda\mu}^i A_\nu^k + F_{\mu\nu}^i A_\lambda^k + F_{\nu\lambda}^i A_\mu^k \\ - F_{\lambda\mu}^k A_\nu^i - F_{\mu\nu}^k A_\lambda^i - F_{\nu\lambda}^k A_\mu^i) \end{aligned} \right\} \quad (29)$$

This is not zero, but nonetheless  $\mathfrak{P}_{\mu\nu,\rho\sigma} m_{\rho\sigma}$  satisfies criteria (i)', (ii)', (iii)'. Hence the above criteria are satisfied.

SALAM and WARD<sup>8)</sup> have pointed out that the situation remains unchanged if the third component of the Yang-Mills field is replaced by the electromagnetic field. This can be checked by noting that our criteria are still satisfied if in the *second*, but not the first set of the Proca equations for the three fields the mass terms (even all three) are taken to be different.

The question whether it may be possible to construct other schemes satisfying our conditions, will not be examined here. Except for the neutral vector meson no other renormalizable scheme has so far been suggested. It may well be that the analysis presented here can do no more than restate known results in what is perhaps a more direct and simple form.

The writer is sincerely grateful to be able to join in this tribute to the memory of Wolfgang Pauli, one of the greatest physicists of this century, who was also so good a friend and wise a counsellor.

#### References

- 1) R. P. FEYNMAN and M. GELL-MANN, Phys. Rev. **109**, 193 (1958).
- 2) J. SCHWINGER, Ann. Phys. **2**, 407 (1957).
- 3) C. FRONSDAL and S. L. GLASHOW, Phys. Rev. Lett. **3**, 570 (1959).
- 4) S. L. GLASHOW, Nucl. Phys. **10**, 107 (1959).
- 5) N. BYERS and R. E. PEIERLS, Nuov. Cim. **10**, 520 (1958).
- 6) J. SCHWINGER, Phys. Rev. **97**, 713 (1953).
- 7) C. N. YANG and R. MILLS, Phys. Rev. **96**, 190 (1954).
- 8) A. SALAM and J. C. WARD, Nuov. Cim. **11**, 568 (1959).

# Nullpunktsenergie und Anordnung nicht vertauschbarer Faktoren im Hamiltonoperator

von C. P. Enz

The Institute for Advanced Study, Princeton, N. J.

und A. Thellung

Institut für Theoretische Physik der Universität Zürich

*Summary.* In general the arrangement of non-commuting factors in a Hamiltonian  $H$  is not completely determined by the requirement that  $H$  must be Hermitian. In the case of the harmonic oscillator the zero point energy can be removed by a perfectly legitimate reordering of the factors  $p$  and  $q$  (i. e. by writing  $H$  as a 'normal product'). This raises the question whether physical effects that confirm the existence of a zero point energy mean that only one particular choice of the order of the  $p$ 's and  $q$ 's in  $H$  is correct. For the case of the sublimation pressure of isotopes and of the Casimir effect this is discussed in full detail. It is shown that the general principles of quantum mechanics (without the addition of any empirical prescriptions about the order of factors) lead to a unique result for such measurable effects, although the Hamiltonian itself is not uniquely defined.

## § 1. Einleitung

Eines der Probleme, die sich beim Übergang von der klassischen Mechanik zur Quantenmechanik stellen, ist die Anordnung nicht vertauschbarer Faktoren im Hamiltonoperator  $H$ . Sie wird im allgemeinen durch die Vorschrift der Hermitezität (und eventuell gewisser Invarianzeigenschaften) nicht eindeutig festgelegt<sup>1)</sup>. Solange  $H$  quadratisch von den Koordinaten  $q$  und Impulsen  $p$  abhängt (dieser Fall entspricht physikalisch immer gewissen Elementaranregungen), unterscheiden sich verschiedene Faktorenanordnungen nur um eine additive Konstante\*). Es hat aber den Anschein, als wäre diese Konstante nicht belanglos, da sie mit der *Nullpunktsenergie* zusammenhängt. Die Hamiltonfunktion eines harmonischen Oszillators können wir zum Beispiel in der konventionellen Form

$$H = \frac{1}{2m} (p^2 + m^2 \omega^2 q^2) \quad (1)$$

oder in der Wickschen Normalform<sup>3)</sup>

$$:H: = \frac{1}{2m} (p + i m \omega q) (p - i m \omega q) \quad (1')$$

\*) Bei Hamiltonoperatoren von höherem als 2. Grad in  $p, q$  sind die Unterschiede weniger trivial. Ein Beispiel hierfür findet sich in der Quantenhydrodynamik<sup>2)</sup>.

schreiben, was klassisch auf dasselbe herauskommt. Quantenmechanisch unterscheiden sich  $H$  und  $:H:$  durch eine Verschiebung aller Eigenwerte um die Nullpunktsenergie  $1/2 \hbar \omega$ ; es ist

$$EW \ H = \hbar \omega \left( n + \frac{1}{2} \right), \quad n = 0, 1, 2, \dots \quad (2)$$

$$EW \ :H: = \hbar \omega n \quad (2)$$

Da  $H$  und  $:H:$  hermitesche Operatoren sind, entsprechen sie, wie auch jede Linearkombination  $\alpha H + \beta :H:$  ( $\alpha, \beta$  reell,  $\alpha + \beta = 1$ ), den allgemeinen Prinzipien der Quantenmechanik.

Der interessante Punkt ist nun, dass es Effekte gibt, bei denen die Nullpunktsenergie von Elementaranregungen physikalisch eine Rolle spielt. Hier werden wir vor allem zwei Beispiele eingehend diskutieren: den Sublimationsdruck (Phononen als Elementaranregungen) und den Casimir-Effekt (Photonen als Elementaranregungen). Weitere Beispiele sind in § 4 erwähnt.

Die Diskussionen um die Nullpunktsenergie (NPE) sind seit PLANCKs grundlegender Arbeit aus dem Jahre 1911<sup>4)</sup> nie ganz verstummt und erhielten erst vor kurzem neuen Auftrieb durch die experimentelle Bestätigung des Casimir-Effekts durch SPARNAAY<sup>5)</sup>. Auch PAULI selbst war an dieser Frage mannigfach interessiert. Anfang der zwanziger Jahre hatte er in Hamburg lange Diskussionen mit OTTO STERN, der gegen PAULIs schwere Bedenken zu kämpfen hatte<sup>\*</sup>). Noch im Sommer vor PAULIs Tod wurde die Frage der NPE in Zürich diskutiert, und PAULI steuerte verschiedene Argumente und historische Episoden aus seinem unerschöpflichen Schatz von Erinnerungen bei.

STERN stützte seine Argumente in den Diskussionen mit PAULI auf seine Berechnung der Dampfdruckunterschiede der Neonisotope 20 und 22, die leider nie publiziert worden ist<sup>\*\*)</sup>. Diese Sternsche Rechnung fand später ihren Niederschlag in PAULIs Kursvorlesung über statistische Mechanik<sup>8)</sup>. Wir geben hier die Paulische Formulierung wieder, da sie den Ausgangspunkt für unsere Diskussion in § 2 bildet.

Für den Sublimationsdruck  $p$  eines einatomigen Gases gilt bei hohen Temperaturen

<sup>\*</sup>) Briefliche Mitteilung von O. STERN. Wir sind Herrn Prof. STERN für seine wertvollen biographischen Angaben aus dieser Zeit zu grossem Dank verpflichtet.

<sup>\*\*)</sup> Siehe jedoch ASTON<sup>6)</sup>. ASTON hatte vergeblich versucht, diese Isotope durch Destillation zu trennen (genau genommen muss es sich um Adsorption gehandelt haben. Nach einer freundlichen Bemerkung von Herrn Prof. CLUSIUS). Wenn man ohne NPE rechnet, ergibt sich ein so grosser Unterschied, dass die Trennung ganz leicht hätte sein müssen (nach O. STERN). Wie PAULI vor allem betonte, war die Sternsche Rechnung noch in der Zeit der Quantentheorie der Phasenintegrale d. h. vor der korrekten halbzahligen Quantisierung gemacht worden. Vgl. auch F. A. LINDEMANN<sup>7)</sup>.

$$\log p = -\frac{1}{2} \log T + i + 3 \log \frac{\hbar \omega}{k} + \frac{1}{kT} \left( -\lambda_0 + 3 \overline{e_0(\omega)} - \frac{3}{2} \hbar \bar{\omega} \right) \quad (3)$$

Hier bedeutet  $T$  die absolute Temperatur,  $i$  die chemische Konstante,  $k$  die Boltzmannsche Konstante,  $\overline{f(\omega)}$  den folgenden Mittelwert der Funktion  $f(\omega)$

$$\overline{f(\omega)} \equiv \frac{\sum_k f(\omega_k)}{\sum_k 1}, \quad (4)$$

wobei über alle Gitteroszillatoren  $k$  mit der Kreisfrequenz  $\omega_k$  zu summieren ist.  $-\lambda_0$  ist die potentielle Gitterenergie pro Atom, wenn sich die Atome in ihren klassischen Ruhelagen im Gitter befinden.  $e_0(\omega_k)$  ist die Nullpunktenergie des Gitteroszillators  $k$ . Nun sind für Isotope der Massen  $m$  und  $m'$  die Kräfte und somit die potentiellen Energien gleich, folglich auch  $\lambda_0$ . Dagegen sind die Oszillatorfrequenzen verschieden:  $\omega/\omega' = \sqrt{m'/m}$  in der harmonischen Näherung (vgl. § 2, Gl. (14)). Wenn nun  $\overline{e_0(\omega)} \neq 1/2 \hbar \bar{\omega}$  wäre, so müsste sich der Term  $\sim 1/kT$  in (3) für Isotope unterscheiden. Experimentell findet man, dass dies nicht der Fall ist, und schliesst daraus, dass die NPE

$$e_0(\omega_k) = \frac{1}{2} \hbar \omega_k \quad (5)$$

beträgt.

Es stellt sich nun die Frage: Bedeutet dieses Resultat, dass nur die Wahl (1) für den Hamiltonoperator des harmonischen Oszillators richtig ist? Und wenn ja, folgt dies aus irgendwelchen theoretischen Überlegungen, oder kann die richtige Faktorordnung nur durch Vergleich mit der Erfahrung bestimmt werden? Das letztere würde allerdings heissen, dass die allgemeinen Prinzipien der Quantenmechanik nicht genügen, um beobachtbare Grössen wie den Sublimationsdruck eindeutig zu bestimmen, sondern dass noch empirische Zusatzvorschriften nötig sind. In § 2 werden wir diese Frage im negativen Sinne beantworten. Dabei werden wir uns von der in <sup>8)</sup> gemachten Debyeschen Näherung befreien, so dass das Resultat völlig allgemein gilt.

Dieselbe Frage stellt sich beim sogenannten Casimir-Effekt. Dabei handelt es sich um Kräfte elektromagnetischer Natur (Retardierungskorrektur zu den London-van-der-Waals-Kräften), die zwischen makroskopischen, elektrisch neutralen Körpern wirksam sind und die CASIMIR<sup>9)</sup> aus der NPE des Strahlungsfeldes herleitete. Nach CASIMIR denkt man sich die makroskopischen Körper in einen Strahlungshohlraum eingeschlossen und berechnet die NPE des derart verstimmten Hohlraumes. Die potentielle Energie der Körper ist dann einfach die Differenz dieser NPE gegenüber der NPE des leeren Hohlraumes. Nun



erfolgte aber die ursprüngliche Herleitung des Effekts durch CASIMIR und POLDER<sup>10)</sup> nach einer anderen Methode, nämlich durch störungstheoretische Berechnung des Austausches virtueller Photonen. Dies lässt uns jetzt schon vermuten, dass es beim Casimir-Effekt auf die Wahl zwischen (1) und (1') nicht ankommen kann. In § 3 werden wir dies in voller Allgemeinheit zeigen.

Die NPE der Strahlung hat nun aber im Vergleich zu derjenigen der Gitterschwingungen noch einen besonderen Aspekt: das Problem ihrer Gravitationswirkung. PAULI hatte diese Frage früh erkannt und, wie er uns sichtlich amüsiert mitteilte, in jungen Jahren auch eine entsprechende Rechnung angestellt. Das Resultat war, dass der Radius der Welt (bei Abschneidung der kurzen Wellenlängen beim klassischen Elektronenradius) «nicht einmal bis zum Mond reichen würde». Diese Rechnung hat unseres Wissens in PAULIS Arbeiten lediglich an einer Stelle eine schwache Spur hinterlassen<sup>11)</sup>, war aber möglicherweise für die oben erwähnten Bedenken gegen O. STERNS Argumente von Bedeutung gewesen.

## § 2. Der Sublimationsdruck

Wir betrachten eine Substanz, bestehend aus  $N$  gleichen Atomen der Masse  $m$ . Ihr Hamiltonoperator sei

$$H = \sum_{\alpha=1}^{3N} \frac{1}{2m} p_{\alpha}^2 + V(x_1, \dots, x_{3N}). \quad (6)$$

$x_{\alpha}$  sind die kartesischen Koordinaten und  $p_{\alpha}$  die Komponenten der Impulse der Atome. Ein Teil der Substanz sei im gasförmigen, der andere im festen Zustand. Für die Atome im Gas, das wir einfachheitshalber als einatomig voraussetzen, vernachlässigen wir die potentielle Energie  $V$ , während wir für die Atome im festen Körper in üblicher Weise annehmen, dass wir die potentielle Energie um ihren Minimalwert  $V_0$  herum nach den Auslenkungen der Atome aus den Gleichgewichtslagen entwickeln können. Unter Vernachlässigung von Oberflächeneffekten zwischen dem Gas und dem festen Körper spaltet sich  $H$  dann auf in

$$H = H_g + H_f, \quad (7)$$

wobei mit einer geeigneten Umbenennung der Indices  $\alpha$

$$H_g = \sum_{\alpha=1}^{3N_g} \frac{1}{2m} p_{\alpha}^2, \quad (8)$$

$$H_f = \sum_{\alpha=1}^{3N_f} \frac{1}{2m} p_{\alpha}^2 + V_0 + \frac{1}{2} \sum_{\alpha=1}^{3N_f} \sum_{\beta=1}^{3N_f} A_{\alpha\beta} \xi_{\alpha} \xi_{\beta} + \dots \quad (9)$$

$p_\alpha$  sind die Impulskomponenten der  $N_g$  Teilchen im Gas und  $p'_\alpha$  diejenigen der  $N_f$  Teilchen im festen Körper. Die  $\xi_\alpha$  bezeichnen die kartesischen Koordinaten der Atome im festen Körper, von ihren Gleichgewichtslagen im Gitter aus gemessen, und es gelten natürlich wie für die ursprünglichen  $p_\alpha$  und  $x_\alpha$  die kanonischen Vertauschungsrelationen

$$[p'_\alpha, \xi_\beta] = -\frac{\hbar}{i} \delta_{\alpha\beta}. \quad (10)$$

Durch eine orthogonale Transformation

$$\left. \begin{aligned} \xi_\alpha &= \sum_{k=1}^{3N_f} T_{\alpha k} Q_k, & p'_\alpha &= \sum_{k=1}^{3N_f} T_{\alpha k} P_k, \\ \sum_{\alpha} T_{\alpha k} T_{\alpha k'} &= \delta_{kk'}, & \sum_k T_{\alpha k} T_{\alpha' k} &= \delta_{\alpha\alpha'}, \end{aligned} \right\} \quad (11)$$

können wir erreichen, dass in (9)

$$\frac{1}{2} \sum_{\alpha, \beta} A_{\alpha\beta} \xi_\alpha \xi_\beta = \frac{1}{2} \sum_k a_k Q_k^2, \quad \sum_{\alpha} p'^2_{\alpha} = \sum_k P_k^2, \quad (12)$$

wobei nun  $P_k$  und  $Q_k$  zueinander kanonisch konjugiert sind, das heisst

$$[P_k, Q_{k'}] = -\frac{\hbar}{i} \delta_{kk'}. \quad (13)$$

Mit  $a_k = m \omega_k^2$  ( $a_k > 0$ , da  $V_0$  das Minimum von  $V$  ist), schreibt sich (9) bei Vernachlässigung der Terme höheren als 2. Grades in den  $\xi_\alpha$

$$H_f = \sum_{k=1}^{3N_f} \frac{1}{2m} (P_k^2 + m^2 \omega_k^2 Q_k^2) + V_0; \quad (14)$$

es ist die Hamiltonfunktion von  $3N_f$  unabhängigen harmonischen Oszilatoren mit den Eigenwerten

$$EW \quad H_f = \sum_{k=1}^{3N_f} \hbar \omega_k \left( n_k + \frac{1}{2} \right) + V_0, \quad n_k = 0, 1, 2, \dots \quad (15)$$

Die Anordnung der  $P_k$  und  $Q_k$  in (14) und damit das Auftreten der Nullpunktsenergie in (15) folgt direkt aus der ursprünglichen Stellung der Operatoren in (9) bzw. (6), da (14) durch die kanonische Transformation (11) mit (9) und (6) verknüpft ist.

Wenden wir nun die Methoden der statistischen Mechanik auf unser System an, so setzt sich seine freie Energie additiv zusammen aus der freien Energie  $F_f$  des festen Körpers und der freien Energie  $F_g$  des Gases. Für  $F_f$  erhält man

$$F_f = kT \sum_k \log \left( 1 - e^{-\frac{\hbar \omega_k}{kT}} \right) + \sum_k e_0(\omega_k) + V_0, \quad (16)$$

wobei wir  $1/2 \hbar \omega = e_0(\omega)$  gesetzt haben. Für hohe Temperaturen ( $\hbar \omega / k T \ll 1$  für alle Oszillatorfrequenzen  $\omega$ ) entwickeln wir

$$\log \left( 1 - e^{-\frac{\hbar \omega}{k T}} \right) = \log \frac{\hbar \omega}{k T} - \frac{1}{2} \frac{\hbar \omega}{k T} + 0 \left( \frac{\hbar \omega}{k T} \right)^2. \quad (17)$$

Benützen wir noch die Definition (4) und setzen wir  $V_0 = -N_f \lambda_0$ , so wird

$$F_f = 3 N_f \left\{ k T \log \frac{\hbar \omega}{k T} - \frac{1}{2} \hbar \overline{\omega} + \overline{e_0(\omega)} \right\} - N_f \lambda_0. \quad (18)$$

Im Gleichgewicht zwischen fester und gasförmiger Phase gilt

$$\frac{\partial F_g}{\partial N_g} = \frac{\partial F_f}{\partial N_f}. \quad (19)$$

Verwenden wir für  $\partial F_g / \partial N_g$  den Ausdruck für das ideale einatomige Gas

$$\frac{\partial F_g}{\partial N_g} = k T \left( \log p - \frac{5}{2} \log T - i \right), \quad (20)$$

$i = \log[(2 \pi m)^{3/2} k^{5/2} h^{-3}]$ , so folgt aus (18), (19) und (20) die Gleichung (3) für den Sublimationsdruck, wobei aber, im Gegensatz zu <sup>8)</sup>, die Debyesche Näherung nicht gebraucht wurde.

Ausgehend vom festen Körper, hätte man aber auch eine andere Anordnung der Faktoren in  $H_f$ , zum Beispiel die (1') entsprechende

$$:H_f: = \sum_{k=1}^{3N_f} \frac{1}{2m} (P_k + i m \omega_k Q_k) (P_k - i m \omega_k Q_k) = H_f - 3 N_f \overline{e_0(\omega)}, \quad (21)$$

wählen können. Dann erhält man durch Umkehrung der kanonischen Transformation (11) den Hamiltonoperator (9) mit dem Zusatz  $-3 N_f \overline{e_0(\omega)}$ , das heisst, das Potential  $V$  in (6) ist nun so normiert, dass bei grossen Abständen der Teilchen eine potentielle Energie  $-3 \overline{e_0(\omega)}$  pro Teilchen übrig bleibt. Da (6) symmetrisch in allen Teilchen sein muss, tritt nun auch ein Term  $-3 N_g \overline{e_0(\omega)}$  in der Hamiltonfunktion des Gases (8) auf. *Der Term  $\sim \overline{e_0(\omega)}$  fällt also in  $F_f$  weg, dafür tritt aber ein Term  $-3 N_g \overline{e_0(\omega)}$  in  $F_g$  auf, und man erhält wieder den Ausdruck (3) für den Sublimationsdruck.* Die Verallgemeinerung auf eine beliebige Linearkombination  $\alpha H_f + \beta :H_f:$  ( $\alpha + \beta = 1$ ) ist trivial.

### § 3. Der Casimir-Effekt

Es ist evident, dass durch Austausch virtueller Photonen im Prinzip Kräfte von makroskopischer Reichweite erzeugt werden. Dass diese in gewissen Fällen eine Rolle spielen können, wurde zuerst von CASIMIR und

POLDER<sup>10)</sup> störungstheoretisch gezeigt. Physikalisch durchsichtig wurde der Effekt in der wenig später von CASIMIR<sup>9)</sup> benützten Methode der Nullpunktsenergie, die wir in § 1 erwähnt haben \*).

Die Casimirsche Methode ist indessen keineswegs auf Felder mit Masse Null (Photonen, Phononen) beschränkt. In der Tat hat WENTZEL<sup>13)</sup> lange vor CASIMIR die Kräfte in der Mesonpaar-Theorie fester Quellen mit Hilfe der Nullpunktsenergie berechnet. Die vollständige Analogie zwischen dem Wentzelschen und dem Casimirschen Problem ist evident aus der Feststellung, dass die Quantenelektrodynamik fester nicht-relativistischer Ladungen wegen der  $A^2$ -Wechselwirkung nichts anderes als eine Paartheorie ist<sup>14)</sup>.

Auf Grund der Formeln von <sup>14)</sup> ist es ein leichtes, die Unabhängigkeit der Wentzel-Casimir-Methode von der Stellung der Operatoren in der Hamiltonfunktion des freien Feldes zu zeigen. Die zur Diskussion stehende potentielle Energie ist in der Schreibweise von <sup>14)</sup>

$$\frac{\hbar}{2} \sum_k (\Omega_k - \omega_k) = \langle 0 | H_0(P', Q') + H_1(P', Q') | 0 \rangle - \langle 0' | H_0(P', Q') | 0' \rangle. \quad (22)$$

$H_0$  ist die Hamiltonfunktion des freien Feldes (Operatoren  $P', Q'$ ) in der Form (1),  $H_1$  dessen Wechselwirkung mit den Quellen.  $|0'\rangle$  bzw.  $|0\rangle$  ist der Grundzustand von  $H_0$  bzw.  $H_0 + H_1$ , das heisst das Vakuum des freien bzw. gekoppelten Feldes.  $\hbar \omega_k$  bzw.  $\hbar \Omega_k$  sind die Quanten des entsprechenden Feldes ( $\hbar \times$  die Eigenfrequenzen des Hohlraumes).

Nun besteht zwischen dem freien und dem gekoppelten Feld eine kanonische Transformation  $A$ , welche entsprechende Zustände ineinander überführt; insbesondere ist

$$|0\rangle = A |0'\rangle. \quad (23)$$

Damit wird (22)

$$\frac{\hbar}{2} \sum_k (\Omega_k - \omega_k) = \langle 0' | A^\dagger H_0 A - H_0 + A^\dagger H_1 A | 0' \rangle. \quad (24)$$

Aus der expliziten Formel (siehe <sup>14)</sup>)

$$A = \lim_{T \rightarrow \infty} e^{-i(H_0 + H_1)T} \cdot e^{iH_0T} \quad (25)$$

ist ersichtlich, dass (24) invariant ist gegenüber der Transformation

$$H_0 \rightarrow H_0 + c \quad (26)$$

\*) Für den Fall eines plattenförmigen, ideal reflektierenden Körpers hat FIERZ<sup>12)</sup> eine elegante Ableitung nach der Casimirschen Methode gegeben.

( $c$  beliebige  $c$ -Zahl), welche die Eigenvektoren invariant lässt. Von dieser Form ist aber der Übergang von  $H_0$  zur Wickschen Ordnung  $:H_0:$ . Die Stellung der Operatoren in  $H_0$  ist also belanglos.

Andererseits ist aber (24) nicht invariant gegenüber

$$H_1 \rightarrow H_1 + c, \quad (27)$$

so dass man  $H_1$  zunächst nicht durch  $:H_1:$  ersetzen kann \*).

Der Zusammenhang mit der störungstheoretischen Methode (CASIMIR und POLDER<sup>10</sup>)) ergibt sich am einfachsten anhand der Schwingerschen Entwicklung von (25)

$$e^{-i(H_0 + H_1)T} e^{iH_0T} = \sum_{n=0}^{\infty} (-i)^n \int_0^T dt_1 \int_0^{t_1} dt_2 \dots \int_0^{t_{n-1}} dt_n H_1(t_n) \dots H_1(t_1), \quad (28)$$

wo

$$H_1(t) = e^{-iH_0t} H_1 e^{iH_0t} \quad (29)$$

die Wechselwirkungsdarstellung von  $H_1$  ist. Der Grundzustand in dieser Darstellung,  $e^{-iH_0t} |0'\rangle$ , ist oszillierend, wenn  $H_0$  von der Form (1) ist, was die Interpretation der NPE als herrührend von Vakuum-Fluktuationen gestattet. Während diese Vakuum-Fluktuationen, Figur 1a, aber keinerlei physikalischen Effekt haben, tragen diejenigen der Wechselwirkung  $H_1$ , Figur 1b, zur Selbstenergie der Quellteilchen bei, genau so wie die eigentlichen Selbstenergie-Graphen, Figur 1c.



Fig. 1a



Fig. 1b



Fig. 1c

Die Stellung der Operatoren in  $H_1$  ist daher ebenfalls unwesentlich, insofern als solche Selbstenergien unbeobachtbar sind, das heisst durch eine Massenrenormalisation eliminiert werden können.

Bei den obigen Betrachtungen hatten wir immer die Paartheorien mit festen Quellen, insbesondere die Quantenelektrodynamik nicht-relativi-

\*) Dies gilt für die Paartheorien. Bei einer 1-Photon- bzw. 1-Meson-Wechselwirkung (z. B. Elektrodynamik relativistischer Ladungen) ist natürlich  $H_1 = :H_1:$ .



stischer Ladungen, im Auge. Die Formulierung von (24), (25) ist jedoch so, dass sie für jede Feldtheorie mit kanonischen Vertauschungsrelationen Geltung hat. Jedoch ist natürlich die Frage nach den Kräften in einer relativistischen Feldtheorie wegen der Rückstösse nicht sehr sinnvoll.

#### § 4. Weitere Beispiele

Mit den in § 2 und § 3 verwendeten Methoden lässt sich auch in den andern Fällen, wo die NPE harmonischer Oszillatoren experimentell nachgewiesen werden kann\*), zeigen, dass die Wahl zwischen (1) und (1') (oder einer Linearkombination) keinen beobachtbaren Unterschied macht. So ergibt zum Beispiel nach § 2 die Berechnung der *Sublimationswärme* pro Atom am absoluten Nullpunkt immer  $\lambda_0 - 3/2 \hbar \omega$ , da es auch hier nur auf die *Energiedifferenz* zwischen den Teilchen im Gas und den Teilchen im Kristall ankommt. Wenn die Kräfte zwischen den Atomen einigermaßen bekannt sind, so kann man  $\lambda_0$  berechnen. Dann lässt sich die Differenz zwischen der Sublimationswärme und  $\lambda_0$  experimentell nachweisen (sofern  $3/2 \hbar \omega$  nicht allzu klein gegenüber  $\lambda_0$  ist).

Ein etwas anderer Fall ist die *Streuung von Röntgenstrahlen oder Neutronen* an Kristallen. Die Tatsache, dass die von der thermischen Bewegung des Gitters herrührende Streuintensität am absoluten Nullpunkt nicht verschwindet, gibt keinen Aufschluss über die Energieeigenwerte der Gitteroszillatoren im Grundzustand. Was in die Rechnung eingeht, sind die Erwartungswerte  $\langle Q_{\hbar}^2 \rangle$  der Quadrate der Oszillatoramplituden<sup>16)</sup>; diese sind auch im Grundzustand immer von Null verschieden und unabhängig von der Wahl (1) oder (1') für  $H$ .

Wir sind Herrn Prof. K. CLUSIUS für wertvolle historische Hinweise zu grossem Dank verpflichtet. Herrn Dr. H. GRÄNICHER danken wir für eine lehrreiche Diskussion über den Casimir-Effekt. Einer der Autoren (C. P. E.) dankt ganz besonders Herrn Prof. J. R. OPPENHEIMER, Direktor des Institute for Advanced Study, für die ihm gewährte Gastfreundschaft und finanzielle Unterstützung sowie dem Schweizerischen Nationalfonds für ein Forschungsstipendium.

#### Literaturverzeichnis

- 1) Siehe z. B. H. A. KRAMERS, Hand- und Jahrbuch der Chem. Phys. (Leipzig 1938), S. 108.
- 2) G. R. ALLCOCK und C. G. KUPER, Proc. Roy. Soc. A, 237, 226 (1955), insbes. S. 229; A. THELLUNG, Helv. Phys. Acta 29, 103 (1956), insbes. S. 114 und die vorangehende Diskussion der Renormalisation der Schallgeschwindigkeit.
- 3) G. C. WICK, Phys. Rev. 80, 268 (1950).

\*) Eine Übersicht über Effekte, bei denen NP-Energien eine Rolle spielen, findet man bei K. CLUSIUS<sup>16)</sup>.

- <sup>4)</sup> M. PLANCK, Verh. dtsch. phys. Ges. *73*, 138 (1911).
- <sup>5)</sup> M. J. SPARNAAY, *Physica* *24*, 751 (1958).
- <sup>6)</sup> F. W. ASTON, *Mass Spectra and Isotopes*, 2. Aufl. (London 1941), S. 252.
- <sup>7)</sup> F. A. LINDEMANN, *Phil. Mag.* *37*, 523 (1919); *38*, 173 (1919).
- <sup>8)</sup> W. PAULI, *Statistische Mechanik*, ausgearbeitet von M. R. SCHAFROTH, Verein der Mathematiker und Physiker an der ETH (Zürich 1947, 1951), S. 49, 50.
- <sup>9)</sup> H. B. G. CASIMIR, *J. Chimie Phys.* *46*, 407 (1949), *Proc. Kon. Ned. Akad. Wet. B* *51*, 793 (1948). Siehe auch H. G. VAN BUEREN, *Proc. Kon. Ned. Akad. Wet. B* *55*, 493 (1952).
- <sup>10)</sup> H. B. G. CASIMIR und D. POLDER, *Phys. Rev.* *73*, 360 (1948).
- <sup>11)</sup> W. PAULI, (Altes) *Handbuch der Physik* (Geiger und Scheel), 2. Aufl. *24*, Teil 1 (1933), S. 250.
- <sup>12)</sup> M. FIERZ, *Helv. Phys. Acta*, *33*, 855 (1960).
- <sup>13)</sup> G. WENTZEL, *Z. Phys.* *118*, 277 (1941); *Helv. Phys. Acta* *15*, 111 (1942).
- <sup>14)</sup> C. P. ENZ, *Nuovo Cimento Suppl.* *3*, 363 (1956).
- <sup>15)</sup> K. CLUSIUS, *Die Chemie* *56*, 241 (1943).
- <sup>16)</sup> Vgl. R. E. PEIERLS, *Quantum Theory of Solids*, Oxford (Clarendon Press), 1955. Vgl. auch M. VON LAUE, *Röntgenstrahl-Interferenzen* (Leipzig 1941), S. 277 ff.

## A Note on Multipole Radiation

by H. B. G. Casimir

### 1. Introduction

In the winter of 1932–1933, after attending a colloquium on internal conversion of  $\gamma$  rays, PAULI and I had a discussion on the question whether a periodically varying charge density with zero static dipole moment could be said to emit dipole radiation. For some reason PAULI at that occasion preferred to restrict the word to the case of a non-vanishing static dipole moment, whereas I was applying this term to any radiation field indistinguishable from the field of a radiating dipole outside a sphere enclosing the radiating charges, irrespective of whether the charge distribution had a non-vanishing static dipole moment. I remember that the discussion became quite violent and confused until we realized that we were mainly disagreeing on matters of terminology. Since then the expansion of a radiation field in a series of electric and magnetic multipole fields has been treated and applied in many papers and texts. Some years ago C. J. BOUWKAMP and I published a note\*) in which we showed that this expansion can be conveniently obtained by means of the so-called Debye potentials. In that note the use of group theory and of vector harmonics was systematically avoided. While this makes the treatment in a way more 'elementary', yet to those familiar with the fundamental notions of the theory of representations of the rotation group, the true nature of multipole fields is best expressed by their transformation properties just in the same way as the spherical harmonics of degree  $l$  are characterized by the property that under a rotation they transform according to a  $(2l + 1)$ -dimensional irreducible representation. In the following I shall show that also the group-theoretical point of view leads in a logical and straightforward way to the use of Debye potentials.

### 2. Vector harmonics and irreducible representations

Let  $Y_l^m(\vartheta, \varphi)$  be the normalized surface harmonics, such that

$$\frac{1}{4\pi} \int \int Y_l^{m*} Y_{l'}^{m'} \sin \vartheta \, d\vartheta \, d\varphi = \delta_{ll'} \delta_{mm'},$$

---

\*) C. J. BOUWKAMP and H. B. G. CASIMIR, On multipole expansions in the theory of electromagnetic radiation, *Physica, 's-Grav.* 20, 539–554, 1954; in the following quoted as *loc. cit.*

and  $T_l^m$  the corresponding polynomial

$$T_l^m = Y_l^m r^l .$$

We have

$$\Delta T_l^m = 0 ,$$

and also

$$\Delta(r^{-2l-1} T_l^m) = 0 .$$

Under a rotation,  $Y_l^m$  and  $T_l^m$  transform with an irreducible representation  $D_l$ ; an inversion leads to multiplication by the factor  $(-)^l$ . Consider  $3(2l+1)$  vector fields  $\mathbf{F}_{s,l}^m$  with  $s = 1, 2, 3$ ;  $-l \leq m \leq l$ ,

$$\mathbf{F}_{s,l}^m = \mathbf{a}(s) T_l^m ,$$

where  $\mathbf{a}(s)$  is the unit vector in the direction of the  $s$ -axis. Any vector field whose components are homogeneous polynomials of degree  $l$  satisfying Laplace's equation is a linear combination of the  $\mathbf{F}_{s,l}^m$ .

The  $\mathbf{F}_{s,l}^m$  transform under a rotation according to the direct product

$$D_1 \times D_l ;$$

inversion gives a factor  $(-)^{l+1}$ .

Let us now consider the expressions

- (a)  $\nabla T_{l+1}^m , (-l-1 \leq m \leq l+1),$
- (b)  $r^{2l+1} \nabla(r^{-2l+1} T_{l-1}^m) = r^2 \nabla T_{l-1}^m - (2l-1) \mathbf{r} T_{l-1}^m , (-l+1 \leq m \leq l-1),$
- (c)  $\text{curl}(\mathbf{r} T_l^m) , \quad (-l \leq m \leq l).$

It is easy to show that the components of each of these fields satisfy Laplace's equation and that they are homogeneous polynomials of degree  $l$ . Hence these vector fields are linear combinations of the  $\mathbf{F}_{s,l}^m$ . Moreover, since they are derived by invariant operations from quantities transforming as  $D_{l+1}$ ,  $D_{l-1}$  and  $D_l$ , respectively, it follows that they transform according to these same representations and therefore are linearly independent. Since the total number is  $3(2l+1)$  we have solved the problem of finding those linear combinations of the  $\mathbf{F}_{s,l}^m$  for which the representation  $D_1 \times D_l$  is split into its irreducible constituents and simultaneously we have proved that these constituents are  $D_{l+1}$ ,  $D_l$  and  $D_{l-1}$ , in agreement with general theorems of group theory. Under inversion all three fields are multiplied by  $(-)^{l-1}$ . For (a) and (b) this is evident, for (c) one has to bear in mind that under an inversion curl changes into  $-\text{curl}$ .

It is satisfactory that the irreducible expressions (a), (b) and (c) can be obtained in a rigorous way without making use of the rather intricate formalism of Clebsch-Gordan coefficients. The following property is worthy of note. If  $f(\mathbf{r})$  is an arbitrary function of  $\mathbf{r}$ , then

$$f(\mathbf{r}) \operatorname{curl} (\mathbf{r} T_l^m) = \operatorname{curl} (\mathbf{r} T_l^m f(\mathbf{r})).$$

This is the most general form of a vector field transforming as  $D_l$  and with inversion factor  $(-)^{l+1}$ . Further we have

$$\mathbf{r} \cdot \operatorname{curl} (\mathbf{r} T_l^m f(\mathbf{r})) = 0,$$

$$\mathbf{r} \cdot \operatorname{curl} \operatorname{curl} (\mathbf{r} T_l^m f(\mathbf{r})) = l(l+1) T_l^m f(\mathbf{r}).$$

This identity follows from the fact that  $T_l^m$  is a homogeneous polynomial of degree  $l$  satisfying Laplace's equation.

The most general vector field transforming as  $D_l$  with inversion factor  $(-)^l$  is

$$\mathbf{F} = h(\mathbf{r}) \mathbf{r}^2 \nabla T_l^m - g(\mathbf{r}) (2l+1) \mathbf{r} T_l^m,$$

where  $h(\mathbf{r})$  and  $g(\mathbf{r})$  are arbitrary functions of  $\mathbf{r}$ . If however  $\mathbf{F}$  has to satisfy the additional condition  $\operatorname{div} \mathbf{F} = 0$  this can always be written in the form

$$\mathbf{F} = \operatorname{curl} \operatorname{curl} (\mathbf{r} T_l^m f).$$

### 3. Solutions of Maxwell's equations

Let us now study the solutions of Maxwell's equations in the region of empty space outside a sphere of radius  $R$ . Since Maxwell's equations

$$\operatorname{curl} \mathbf{H} + i k \mathbf{E} = 0$$

$$\operatorname{curl} \mathbf{E} - i k \mathbf{H} = 0$$

are invariant under rotation, any solution is transformed by rotation into another solution. It follows from the completeness theorem of irreducible representations that the most general solution can be obtained by superposition of solutions that transform according to irreducible representations. Now if  $\mathbf{E}$  transforms as  $D_l$  also  $\mathbf{H}$  transforms as  $D_l$ , but if the inversion factor of  $\mathbf{E}$  is  $(-)^l$  that of  $\mathbf{H}$  is  $(-)^{l+1}$  and vice versa.

There are hence two types of irreducible fields

(A)

$\mathbf{E}$  transforms as  $D_l$  with inversion factor  $(-)^{l+1}$ . Then

$$\mathbf{E} = \operatorname{curl} (\mathbf{r} f(\mathbf{r}) T_l^m),$$



and

$$\mathbf{H} = \frac{1}{i k} \text{curl curl} \left( \mathbf{r} f(r) T_l^m \right),$$

from which follows

$$\mathbf{E} \cdot \mathbf{r} = 0, \quad \mathbf{H} \cdot \mathbf{r} = \frac{l(l+1)}{i k} f(r) T_l^m.$$

It follows from Maxwell's equations and the radiation condition at infinity that we can write

$$f(r) = \frac{1}{r^l} C i k h_l(k r) e^{-i\omega t},$$

with

$$h_l(k r) = \left( \frac{\pi}{2 k r} \right)^{1/2} H_{l+1/2}^{(1)}(k r).$$

I shall denote these fields (for  $C = 1$ ) by

$${}_M \mathbf{E}_l^m, \quad {}_M \mathbf{H}_l^m;$$

they are the magnetic  $2^l$ -pole fields. Any superposition of such magnetic multipole fields can be written in the form

$$\mathbf{E} = i k \text{curl} (\mathbf{r} \Pi_2),$$

$$\mathbf{H} = \text{curl curl} (\mathbf{r} \Pi_2).$$

(B)

$\mathbf{H}$  transforms as  $D_l$  with inversion factor  $(-)^{l+1}$ . Then

$$\mathbf{H} = \text{curl} (\mathbf{r} f(r) T_l^m),$$

$$\mathbf{E} = -\frac{1}{i k} \text{curl curl} (\mathbf{r} f(r) T_l^m),$$

from which follows

$$\mathbf{r} \cdot \mathbf{H} = 0, \quad \mathbf{r} \cdot \mathbf{E} = -\frac{l(l+1)}{i k} f(r) T_l^m.$$

Again

$$f(r) = \frac{1}{r^l} C i k \left( \frac{\pi}{2 k r} \right)^{1/2} H_{l+1/2}^{(1)}(k r) e^{-i\omega t}.$$

Such fields are called *electric*  $2^l$ -pole fields and will be denoted (for  $C = 1$ ) as

$${}_E \mathbf{E}_l^m, \quad {}_E \mathbf{H}_l^m.$$

Any superposition of electric multipole fields can be written as

$$\mathbf{H} = -i k \text{curl} (\mathbf{r} \Pi_1),$$

$$\mathbf{E} = \text{curl curl} (\mathbf{r} \Pi_1).$$

Our group-theoretical analysis leads therefore automatically to the Debye potentials.

#### 4. Source representations

The most general solution of Maxwell's equations for  $r > R$  is

$$\mathbf{E} = \sum_{l,m} a_{l,m}^m \mathbf{E}_l^m + \sum_{l,m} b_{l,m}^m \mathbf{E}_l^m, \\ \mathbf{H} = \sum_{l,m} a_{l,m}^m \mathbf{H}_l^m + \sum_{l,m} b_{l,m}^m \mathbf{H}_l^m.$$

The coefficients can be determined by the method of *loc. cit.* We have

$$\mathbf{r} \cdot \mathbf{H} = \sum_{l,m} b_{l,m}^m l(l+1) \Pi_l^m, \\ \mathbf{r} \cdot \mathbf{E} = \sum_{l,m} a_{l,m}^m l(l+1) \Pi_l^m,$$

where

$$\Pi_l^m = h_l(kr) T_l^m.$$

It follows that the scalar quantities  $\mathbf{r} \cdot \mathbf{H}$  and  $\mathbf{r} \cdot \mathbf{E}$  satisfy the equation of D'ALEMBERT, a result that came somewhat as a surprise in *loc. cit.* In *loc. cit.* a source representation for these quantities was obtained by expansion of explicit expressions for  $\mathbf{r} \cdot \mathbf{H}$  and  $\mathbf{r} \cdot \mathbf{E}$  obtained from the differential equations

$$\mathbf{r} \cdot \mathbf{H} = (i k/c) \sum_{l,m} \Pi_l^m \int \mathbf{i} \cdot \text{curl}' (\mathbf{r}' \Pi_l^{m*}) dV', \\ \mathbf{r} \cdot \mathbf{E} = - (1/c) \sum_{l,m} \Pi_l^m \int \mathbf{i} \cdot \text{curl}' \text{curl}' (\mathbf{r}' \Pi_l^{m*}) dV',$$

from which we obtain immediately

$$a_{l,m}^m = - \frac{1}{c} \frac{1}{l(l+1)} \int \mathbf{i} \cdot \text{curl}' \text{curl}' (\mathbf{r}' j_l(kr') Y_l^m(\vartheta', \varphi')) dV', \\ b_{l,m}^m = \frac{i k}{c} \frac{1}{l(l+1)} \int \mathbf{i} \cdot \text{curl}' (\mathbf{r}' j_l(kr') Y_l^m(\vartheta', \varphi')) dV',$$

where we have followed the notations of *loc. cit.*:

$$j_l(x) = \left( \frac{\pi}{2x} \right)^{1/2} J_{l+1/2}(x).$$

Of course, the general form of the integrand in these expressions follows also from group-theoretical arguments. Group theory does not provide us with the constants of proportion, although it does indicate the existence and general form of the addition theorem that is at the basis of the expansions for  $\mathbf{r} \cdot \mathbf{E}$  and  $\mathbf{r} \cdot \mathbf{H}$ .

Let us now return to the question mentioned at the beginning of this note. It seems reasonable to say that a charge-current distribution emits

pure electric dipole radiation if  $b_l^m = 0$  for all  $l, m$  and  $a_l^m = 0$  for  $l \neq 1$ . In that case the radiation field for  $r > R$  is identical with the field of a radiating dipole. This condition is satisfied if  $\mathbf{i}$  transforms as  $D_1$  with inversion factor  $-1$ . For a dipole field with axis in the  $z$ -direction the most general current distribution of this type is

$$\mathbf{i} = \{g(r) + h(r)\} \mathbf{e}_z - 3 \mathbf{r} \cdot z h(r)/r^2,$$

where  $g(r)$  and  $h(r)$  are zero for  $r \geq R$  but are otherwise arbitrary continuous functions of  $r$ .

The static dipole moment is given by

$$q_{stat} = -\frac{1}{i\omega} \int \int \int_{r < R} i_z dV = -\frac{4\pi}{i\omega} \int_0^R g(r) r^2 dr.$$

If  $g_0(r)$  is a function satisfying

$$g_0(r) = 0 \quad \text{for } r \geq R \quad \text{and} \quad \int_0^R g_0(r) r^2 dr = 0,$$

then

$$\mathbf{i} = \{g_0(r) + h(r)\} \mathbf{e}_z - 3 \mathbf{r} \cdot z h(r)/r^2$$

is the most general current distribution having no static dipole moment and emitting pure electric dipole radiation. Exactly the same radiation field would be emitted by a dipole of infinitesimal dimensions with a dipole moment

$$q_{eq} = -\frac{4\pi}{i\omega} \int \left[ \frac{\sin kr}{kr} g_0(r) + \frac{1}{kr} \left\{ \sin kr - 3 \left( \frac{\sin kr}{k^2 r^2} - \frac{\cos kr}{kr} \right) \right\} h(r) \right] r^2 dr.$$

## Zur Anziehung leitender Ebenen im Vakuum

von **M. Fierz**

(Genf, CERN)

M. J. SPARNAAY<sup>1)</sup> ist es gelungen, die Kraft, mit welcher sich zwei Metallplatten zufolge der Quantennatur des elektromagnetischen Strahlungsfeldes anziehen, experimentell nachzuweisen. CASIMIR<sup>2)</sup> hat die Grösse dieser Kraft unter der Annahme berechnet, dass nur die Nullpunktsenergie des Strahlungsfeldes dazu etwas beitrage. Da aber die Messungen bei Zimmertemperatur ausgeführt worden sind, und da bei hohen Temperaturen die Plancksche Temperaturstrahlung die Wirkungen der Nullpunktsenergie genau kompensiert, so erhebt sich die Frage, ob es berechtigt ist, bei den vorliegenden Experimenten die Temperaturstrahlung zu vernachlässigen. Denn die für dieses Experiment charakteristische Grösse

$$X = \frac{2 \pi k T a}{\hbar c}$$

wo  $a$  der Plattenabstand bedeutet, ist keineswegs klein gegen eins.

Wir nennen  $V(a, T)$  die potentielle Energie pro Flächeneinheit eines ungeladenen Plattenkondensators mit dem Plattenabstand  $a$  und bei der Temperatur  $T$ . Diese rührt erstens von der Nullpunktsenergie und zweitens von der thermischen Energie des elektromagnetischen Feldes her. Der Vollständigkeit halber wollen wir hier beide Teile berechnen; der Beitrag des ersten Teiles ist gerade der, auf den sich CASIMIR beschränkt hat.

### Das Potential der Nullpunktsenergie

Da die Nullpunktsenergie divergent ist, betrachte man drei planparallele Platten, die die Abstände  $a$  und  $A - a$  voneinander besitzen. Man berechne mit Hilfe eines geeigneten konvergenzerzeugenden Faktors die Energie dieser Anordnung und subtrahiere davon die Energie der gleichen Anordnung mit  $a = A/2$ . Nach der Subtraktion lässt man den Konvergenzfaktor verschwinden und macht schliesslich noch  $A \rightarrow \infty$ . Auf diese Weise erhält man eine endliche Potentielle Energie  $J(a)$  als Funktion des Abstandes  $a$ .

Wir rechnen im folgenden in Einheiten, in denen  $\hbar = c = k = 1$  gesetzt sind. (N.B.:  $\hbar$  ist die Plancksche Konstante  $6,24 \cdot 10^{-27}$  erg. s,  $k$  die Boltzmannsche Konstante.)

Die Kondensatorplatten werden als ideale Leiter behandelt, auf denen die tangentielle elektrische Feldstärke verschwindet. Daher sind die möglichen Eigenfrequenzen durch

$$\nu = \frac{1}{2} \sqrt{\left(\frac{n}{a}\right)^2 + x^2 + y^2} \quad (1)$$

gegeben, mit  $n = 0, 1, 2, 3 \dots$  (N.B.:  $n = 0$  kommt einmal,  $n \neq 0$  zweimal vor.) Die potentielle Energie unserer Anordnung ist darum durch

$$J(a) = \lim_{\substack{\alpha \rightarrow 0 \\ A \rightarrow \infty}} \{ E(\alpha, a) + E(\alpha, A - a) - 2 E(\alpha, A/2) \} \quad (2)$$

gegeben mit

$$E(\alpha, a) = \frac{1}{2} \sum_{n=1}^{\infty} \int_0^{\infty} dx dy \sqrt{\left(\frac{n}{a}\right)^2 + x^2 + y^2} \cdot e^{-\alpha \sqrt{\left(\frac{n}{a}\right)^2 + x^2 + y^2}}$$

$\alpha$  ist ein konvergenzerzeugender Faktor. Mit

$$\left(\frac{a}{n}\right)^2 (x^2 + y^2) = z \quad (3)$$

kann  $E(\alpha, a)$  wie folgt geschrieben werden:

$$E(\alpha, a) = - \frac{d^3}{d\alpha^3} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\pi}{8} \int_0^{\infty} \frac{dz}{z+1} e^{-\frac{n}{a} \alpha \sqrt{z+1}} \quad (4)$$

Nun kann man die Summe über  $n$  ausführen und hernach das Integral über  $z$ . So erhält man

$$E(\alpha, a) = \frac{\pi}{4a} \frac{d^2}{d\alpha^2} \frac{a/\alpha}{e^{a/\alpha} - 1} \quad (5)$$

Weil

$$\frac{y}{e^y - 1} = \sum_{\nu} \frac{B_{\nu}}{\nu!} y^{\nu},$$

so gilt

$$E(\alpha, a) = \frac{\pi}{4a} \frac{d^2}{d\alpha^2} \sum_{\nu} \frac{B_{\nu}}{\nu!} \cdot \left(\frac{\alpha}{a}\right)^{\nu-2}. \quad (6)$$

Setzt man diesen Ausdruck in  $J(a)$  ein, so heben sich dort die Terme mit  $\nu = 0, 1$  fort. Darum kann man  $\alpha = 0$  und hernach  $A = \infty$  setzen und erhält

$$J(a) = \frac{\pi}{2} \frac{B_4}{4!} \frac{1}{a^3}.$$

Das ist das Resultat von CASIMIR.



### Die Energie der Temperaturstrahlung

Da die Energie der Temperaturstrahlung endlich ist, genügt es hier, nur zwei Platten im Abstand  $a$  zu betrachten. Die Energie pro Flächeneinheit ist durch

$$\left. \begin{aligned} E_T(a) &= \sum_{-\infty}^{+\infty} \int_0^{\infty} dx dy \frac{\nu(n)}{e^{\nu(n)/T} - 1} = \sum_{-\infty}^{+\infty} b(n); \\ \nu(n) &= \frac{1}{2} \sqrt{\left(\frac{n}{a}\right)^2 + x^2 + y^2}. \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

gegeben. Auf (7), wenden wir nun die Poissonsche Summenformel an, die lautet:

Wenn

$$c_m = \int_{-\infty}^{+\infty} b(x) e^{-2\pi i m x} dx$$

gesetzt wird, so ist

$$\sum_{-\infty}^{+\infty} b(n) = \sum_{-\infty}^{+\infty} c_m.$$

Es ist hier

$$c_m = \frac{a}{2} \int_0^{\infty} dx dy \int_{-\infty}^{+\infty} dz \frac{\nu e^{-2\pi i m a z}}{e^{\nu/T} - 1}; \quad \nu^2 = x^2 + y^2 + z^2. \quad (8)$$

Man erkennt nun, dass  $c_0$  der bekannte Ausdruck für die Energiedichte  $U(T)$  der schwarzen Strahlung ist, der noch mit  $a$  multipliziert erscheint. Dieser Beitrag zum Strahlungsdruck im Inneren wird durch den äusseren Strahlungsdruck kompensiert, weshalb es auf

$$E_T(a) - a U(T) = 2 \sum_{m=1}^{\infty} c_m \quad (9)$$

ankommt. Denn es ist ja  $c_m = c_{-m}$ . Eine leichte Rechnung ergibt nun

$$c_m = \frac{2 T^3}{m} \int_0^{\infty} \nu^2 d\nu \frac{\sin 4\pi a T m \nu}{e^{\nu} - 1} = \frac{2 T^3}{m} J_m. \quad (10)$$

Mit Hilfe einer bei WHITTAKER-WATSON angegebenen Formel\*) (Chapt. VI, Example 2, p. 122) lässt sich auch das Integral  $J_m$  ausführen, und man erhält

$$J_m = \frac{1}{(4\pi m a T)^3} - \frac{\pi^3 C h 4 \pi^2 m a T}{(S h 4 \pi^2 m a T)^3}. \quad (11)$$

\*) Auf diese Formel machte mich Herr Professor W. PAULI in einem Brief vom 30. 10. 58 aufmerksam.

### Das Gesamtpotential $V(a, T)$

Setzt man (10), (11) in (9) ein, und bildet

$$J(a) + E_T(a) - c_0 = V(a, T), \quad (12)$$

so erkennt man, dass der erste Term in  $J_m$ , wegen

$$-\frac{1}{(2\pi)^3} \sum_{m=1}^{\infty} \frac{1}{m^4} = \frac{\pi}{4!} B_4 \quad (13)$$

$J(a)$  genau kompensiert. Daher ist

$$V(a, T) = -(\pi T)^3 \cdot 4 \sum_{m=1}^{\infty} \frac{Ch \ 4 \ \pi^2 \ ma T}{m(Sh \ 4 \ \pi^2 \ ma T)^3}. \quad (14)$$

Weil  $E_T(a)$  für  $T = 0$  verschwindet, ist natürlich

$$V(a, 0) = J(a),$$

was man aus (14), mit Hilfe von (13), leicht erkennt.

Will man  $V(a, T)$  mit  $J(a)$  vergleichen, so hat man die Funktion

$$f(x) = \sum_{m=1}^{\infty} \frac{x^3 Ch \ mx}{m(Sh \ mx)^3}, \quad \text{mit } x = 4 \pi^2 a T \quad (15)$$

zu betrachten.

Die Summe über  $m$  in (15) konvergiert für alle  $x$  sehr schnell; es genügt praktisch das erste Glied,  $m = 1$ , zu betrachten.

Ist  $0 < x < 1$ , so ist  $f(x)$  nahezu konstant; für  $x > 1$  verschwindet  $f(x)$  sehr schnell.

(Man findet  $f(0) = 1,08$ ;  $f(1) = 0,98$ ;  $f(2) = 0,63$ ;  $f(3) = 0,27$ ;  $f(4) = 0,07$ .)

Der kritische Abstand  $a$ , bei welchem bei Zimmertemperatur ( $T = 300^\circ$ ) der Effekt noch praktisch demjenigen bei  $T = 0$  entspricht, ist somit durch  $x = 1$  oder

$$a = \frac{\hbar c}{2 \pi k T} = 1,2 \cdot 10^{-4} \text{ cm} \quad (16)$$

gegeben.

Die Messungen sind im Intervall  $(0,5 < a < 2) \cdot 10^{-4} \text{ cm}$  durchgeführt worden, wobei der Effekt unterhalb  $10^{-4} \text{ cm}$  deutlich nachweisbar war. In diesem Gebiet kann die Temperaturstrahlung gerade vernachlässigt werden.

### Literaturverzeichnis

<sup>1)</sup> M. J. SPARNAAY, *Physica* 24, 751 (1958).

<sup>2)</sup> H. B. G. CASIMIR, *Proc. kon. Ned. Akad. Wetenschap* 51, 793 (1948).

# On the Phase Transition of a Superconductor

by **Gregor Wentzel**

The Enrico Fermi Institute for Nuclear Studies and the Department of Physics,  
University of Chicago, Chicago (Illinois)\*

*Abstract.* In previous studies of the statistical mechanics of a superconductor, only the 'reduced Hamiltonian' of the BCS theory<sup>1)</sup> has been used which ignores the vast majority of the electron-electron interactions. Here, the Hamiltonian is extended by including the other interactions as perturbations up to the second order. As a preliminary step, omitting all but the first-order terms in the Hamiltonian, we derive a rigorous expression for the free energy. Then, to take account of the second-order perturbations, a variational method is used. Particular attention is paid to the behavior of the free energy near the critical temperature. Effects of the lattice periodicity are not examined in this paper.

## 1. Introduction

The thermal behavior of a superconductor has been theoretically studied by BARDEEN, COOPER, and SCHRIEFFER<sup>1)</sup>, and by BOGOLIUBOV, ZUBAREV, and TSERKOVNIKOV<sup>2)</sup>. In both studies, the BCS model of a superconductor was used. This model is characterized by a 'reduced Hamiltonian' in which only pairs of electrons with opposite momenta appear coupled. As a technique of calculation, BCS used a variational approximation (minimization of the free energy), whereas BZTs were able to prove that the free energy, as calculated by BCS, is exact in the sense that the volume-proportional part of the free energy is completely and rigorously given by the BCS result. (See, however, our comments at the end of section 2.) Subject to certain conditions, the system has a phase transition of the second order (in the absence of external fields), and the specific heat vs. temperature curve shows a remarkable resemblance to the experimental curves.

The following question must be raised, however. The interaction matrix-elements contained in BCS's reduced Hamiltonian form only a very small (actually, vanishingly small) minority among all matrix-elements appearing in a more realistic Hamiltonian, e.g. in the interactions mediated by virtual phonons. Some people argue that these additional interactions, presumably, will affect the superconductive and the normal state essentially in the same manner and can therefore be

---

\*) Most of this work was carried out while the author was visiting at Bell Telephone Laboratories, Murray Hill, New Jersey.

omitted, in a first approximation, in spite of their large number. Plausible as this argument is, it has not been substantiated.

The main purpose of the present study is to adduce some evidence in favor of this view. If one wants to take account of all (or a majority of) the additional interactions, he can do this only in some approximation. We intend to treat the additional matrix elements in the Hamiltonian by a perturbation theory up to the second order, and the results will show that this is not unreasonable as far as differences between the superconductive and normal phases are concerned. It will turn out that in our approximation the phase transition (if it exists at all) retains very nearly its second order character.

The procedure will be in two steps. We shall first simplify the BZTs method<sup>2)</sup> and at the same time generalize it to allow the lowest order selfenergy of the electron gas to be included. This problem can still be treated rigorously. Then, adding the second-order perturbations, we have to resort to a variational method.

## 2. First-Order Hamiltonian

We consider interaction operators involving products of four free-electron absorption and emission operators

$$(a_{k_4 s}^* a_{k_3 s}) (a_{k_2 s}^* a_{k_1 s}) \quad (1)$$

( $k_2 - k_1 = k_3 - k_4 \neq 0$ ). They may refer to phonon-mediated and (screened) Coulomb interactions. For the BCS pair interaction we have  $k_3 = -k_1$ ,  $k_4 = -k_2$ , and  $s' = -s$ . We write it as

$$H_2 = -V^{-1} \sum_{kk'} J_{kk'} (a_{-k-}^* a_{k+}^*) (a_{k'+} a_{-k'-}) \quad (2)$$

where  $a_{k+}$  refers to an electron with momentum  $k$  and spin *up*, while  $a_{-k-}$  refers to an electron with momentum  $-k$  and spin *down*.  $J_{kk'} > 0$  is favorable for 'superconductivity'. In addition, we include in the first-order Hamiltonian the selfenergy term  $k_3 = k_2$ ,  $k_4 = k_1$ ,  $s' = s$ :

$$\left. \begin{aligned} H_1 &= V^{-1} \sum_{kk'} I_{kk'} \sum_s a_{ks} a_{ks}^* a_{k's}^* a_{k's} \\ &= -V^{-1} \sum_{kk'} I_{kk'} \sum_s \left( a_{ks}^* a_{ks} - \frac{1}{2} \right) \left( a_{k's}^* a_{k's} - \frac{1}{2} \right) + \\ &\quad + \frac{1}{2} V^{-1} \sum_{kk'} I_{kk'} \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

$I_{kk'}$  (like  $J_{kk'}$ ) is real and symmetric ( $I_{kk} = 0$ ). Note that, regarding Coulomb interactions, we have included in  $H_1$  the single-electron self-energies which should really be subtracted ( $a_{ks} a_{ks}^* = 1 - a_{ks}^* a_{ks} \rightarrow -a_{ks}^* a_{ks}$ ), but an equivalent subtraction can be made in the kinetic energy, provided a high-energy cutoff is conceded.

Now introduce operators

$$A_{ks} = \left( a_{ks}^* a_{ks} - \frac{1}{2} \right) + \xi_{ks} \quad (4)$$

$$B_k = a_{k+} a_{-k-} + \eta_k \quad (5)$$

where  $\xi_{k+}$ ,  $\xi_{k-}$ , and  $\eta_k$  are real functions which are to serve as trial functions. The 'perturbation' will comprise the terms

$$H' = -V^{-1} \sum_{kk'} (I_{kk'} \sum_s A_{ks} A_{k's} + J_{kk'} B_k^* B_{k'}) \quad (6)$$

whereas all the rest defines the unperturbed system:

$$\left. \begin{aligned} H^0 &= H_{kin} + H_1 + H_2 - H' + \text{const.} \\ &= \sum_k [(k^2 - k_0^2)/2m] \sum_s \left( a_{ks}^* a_{ks} - \frac{1}{2} \right) + \\ &+ 2 \sum_k \sum_s \Gamma_{ks} \left( a_{ks}^* a_{ks} - \frac{1}{2} \right) \\ &+ \sum_k \Delta_k (a_{k+} a_{-k-} + a_{-k-}^* a_{k+}^*) + U \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

where

$$\Gamma_{ks} = V^{-1} \sum_{k'} I_{kk'} \xi_{k's} \quad (8)$$

$$\Delta_k = V^{-1} \sum_{k'} J_{kk'} \eta_{k'} \quad (9)$$

$$U = V^{-1} \sum_{kk'} (I_{kk'} \sum_s \xi_{ks} \xi_{k's} + J_{kk'} \eta_k \eta_{k'}) \quad (10)$$

In (7) we can replace

$$2 \sum_s \Gamma_{ks} \left( a_{ks}^* a_{ks} - \frac{1}{2} \right) \quad \text{by} \quad (\sum_{s'} \Gamma_{ks'}) \sum_s \left( a_{ks}^* a_{ks} - \frac{1}{2} \right),$$

the difference of these expressions being proportional to  $\Gamma_{k+} - \Gamma_{k-}$  which will eventually vanish [see (26)]. The quantity

$$\varepsilon_k = (k^2 - k_0^2)/2m + \sum_{s'} \Gamma_{ks'} \quad (11)$$

will then play the role of a 'renormalized' kinetic energy. The constant  $k_0$  shall be chosen such that  $\varepsilon_k$  vanishes at the Fermi surface.

$H^0$  is diagonalized by the quasi-particle transformation

$$\left. \begin{aligned} a_{k+} &= u_k \alpha_{k+} + v_k \alpha_{-k-}^* \\ a_{-k-} &= u_k \alpha_{-k-} - v_k \alpha_{k+}^* \end{aligned} \right\} \quad (12)$$

$$u_k^2 = \frac{1}{2} (1 + \varepsilon_k/E_k) \quad , \quad v_k^2 = \frac{1}{2} (1 - \varepsilon_k/E_k) \quad (13)$$



$$E_k = (\Delta_k^2 + \varepsilon_k^2)^{1/2} (> 0) \quad (14)$$

with the result

$$H^0 = U + \sum_k E_k n_k \quad (15)$$

where

$$n_k = \alpha_{k+}^* \alpha_{k+} + \alpha_{-k-}^* \alpha_{-k-} - 1 \quad (16)$$

$n_k$  has the eigenvalues  $-1, 0, 0, +1$ . Note that  $H^0$  depends on the trial functions through  $E_k$  [(14) with (8), (9), (11)] and  $U$  (10).

The free energy, at the temperature  $T = 1/\beta$ , of the unperturbed system can then be written

$$F^0 = U + F' \quad (17)$$

$$\left. \begin{aligned} F' &= -\beta^{-1} \sum_k \ln \sum_{n_k} \exp(-\beta E_k n_k) \\ &= -2\beta^{-1} \sum_k \ln (2 \cosh \beta E_k/2) \end{aligned} \right\} \quad (18)$$

Note that the thermal average of  $n_k$  is

$$(n_k)_{av} = \partial F' / \partial E_k = -\tanh \beta E_k/2 \equiv -\tau_k^0 \quad (19)$$

Also, from (12) and (19)

$$(a_{ks}^* a_{ks})_{av} = -\frac{1}{2} (\sum_s a_{ks}^* a_{ks})_{av} = -\frac{1}{2} (1 - \tau_k^0 \varepsilon_k / E_k) \quad (20)$$

$$(a_{k+} a_{-k-})_{av} = -\tau_k^0 \Delta_k / 2 E_k \quad (21)$$

Let us now minimize  $F^0$  with regard to the trial functions, using (19) again:

$$\frac{\partial F^0}{\partial \xi_{ks}} = \frac{\partial U}{\partial \xi_{ks}} - \sum_{k'} \tau_{k'}^0 \frac{\partial E_{k'}}{\partial \xi_{ks}} = 0 \quad (22)$$

$$\frac{\partial F^0}{\partial \eta_k} = \frac{\partial U}{\partial \eta_k} - \sum_{k'} \tau_{k'}^0 \frac{\partial E_{k'}}{\partial \eta_k} = 0 \quad (23)$$

With the definitions (10) and (14) [with (8), (9), (11)] this gives

$$2 \xi_{ks} = \tau_k^0 \varepsilon_k / E_k \quad (24)$$

$$2 \eta_k = \tau_k^0 \Delta_k / E_k \quad (25)$$

This result must be compatible with (8) and (9):

$$\Gamma_{ks} = V^{-1} \sum_{k'} I_{kk'} \tau_{k'}^0 \varepsilon_{k'} / 2 E_{k'} \quad (26)$$

$$\Delta_k = V^{-1} \sum_{k'} J_{kk'} \tau_{k'}^0 \Delta_{k'} / 2 E_{k'} \quad (27)$$

Equation (27), in conjunction with (14), is the integral equation, originally derived by BCS<sup>1</sup>), which determines the 'energy gap'  $\Delta_k$  as a function of the temperature [see (19)], and its solution in the 'weak coupling case' is well known. Then, inserting (26) into (11) gives the renormalized kinetic energy; the quantity

$$\frac{1}{k} \frac{d\varepsilon_k}{dk} = \frac{1}{m} + \frac{2}{k} \frac{d\Gamma_{ks}}{dk} = \frac{1}{m^*(k)} \quad (28)$$

defines an effective mass  $m^*$  which in turn determines the density of states in the vicinity of the Fermi surface.

It remains to be proved that  $F^0$ , as defined by (17), (18) and minimized as described, gives the volume-proportional part of the free energy  $F$  *completely*, or in other words, that this part is not affected by the perturbation  $H'$  (6). This is a consequence of the fact that the thermal averages of the quantities  $A_{ks}$  and  $B_k$  vanish:

$$(A_{ks})_{av} = 0, \quad (B_k)_{av} = 0 \quad (29)$$

Indeed, by inserting (20), (21) and (24), (25) into (4) and (5) this is immediately verified. Then, the proof given by BZTs<sup>2</sup>) for the case  $I_{kk'} = 0$  can be readily generalized. Namely, writing down the  $m$ th order correction to the partition function,  $Tr \exp(-\beta(H^0 + H'))$ , one meets with expressions of the following type

$$V^{-m} Tr [\exp(-\beta H^0) \prod_{i=1 \dots 2m} \{\exp(\beta_i H^0) C_{k_i} \exp(-\beta_i H^0)\}]$$

where each  $C_{k_i}$  stands for one of the operators  $A_{ks}$ ,  $B_k$ ,  $B_k^*$ . (The  $\beta_i$  are integration variables.) It is easily seen that the Trace vanishes, on account of (29), if *one* momentum, say  $\mathbf{k}_1$ , is different from all the other momenta,  $\mathbf{k}_2 \dots \mathbf{k}_{2m}$ , occurring in the product. In order to obtain a non-vanishing term, one has to have  $m$  pairs of *equal*  $\mathbf{k}_i$ 's so that, after multiplying with the appropriate factors  $I_{kk'}$ ,  $J_{kk'}$  and then summing over  $\mathbf{k}_1 \dots \mathbf{k}_{2m}$ , the sum runs only over  $m$  independent  $\mathbf{k}$ -vectors. If one then divides by  $Tr \exp(-\beta H^0)$  and finally writes the sums as integrals (for  $V \rightarrow \infty$ ), the factors  $V^{-m}$  and  $V^m$  cancel out and the result becomes volume-independent. Hence, up to any finite order ( $m \ll N$  - total number of particles):

$$\lim_{V \rightarrow \infty} \frac{Tr \exp(-\beta(H^0 + H'))}{Tr \exp(-\beta H^0)} = \text{finite},$$

and

$$\lim_{V \rightarrow \infty} V^{-1} (F - F^0) = 0, \quad q. e. d.$$

The discussion of  $F^0$  will be postponed, but some general comments should be made at this point. While  $\xi_{ks}$  (24) and  $\Gamma'_{ks}$  (26) have well-

defined signs, a simultaneous change of sign in  $\eta_k$  and  $\Delta_k$  is compatible with (25) and (27); but these two solutions are physically equivalent, and we are free to choose  $\Delta_k \geq 0$ . As is well known, there is always the formal solution  $\eta_k = 0$ ,  $\Delta_k = 0$ ; this is the so-called trivial solution. It should be pointed out, however, that it is an unacceptable solution if a non-trivial one, giving a lower free energy, exists. This follows already from the mere fact that the free energy is defined unambiguously in terms of the energy eigenvalues of the system. But it is also easy to see why the trivial solution goes wrong. Indeed, it is clear from (7) that, for  $\Delta_k = 0$ ,  $H^0$  reduces to the *kinetic* energy, and *all* of the interaction  $H_2$  is then treated as a perturbation, i.e. by an expansion in powers of a coupling parameter  $J$ . This is certainly wrong for a condensed state in which some physical quantities like the energy gap behave non-analytically as  $J$  goes to zero. By the same token, the non-trivial 'rigorous' solution could be wrong too, namely, if some collective effects are hidden in  $H'$  and remain unnoticed owing to the perturbation expansion. Quite generally, it should be realized that the type of rigorous solution one obtains by the BZTs method is heavily prejudiced by the type of terms which one includes in the 'unperturbed' Hamiltonian, a choice based primarily on physical intuition.

### 3. Second-Order Approximation

We now want to take into account, at least approximately, the vast majority of the interaction matrix-elements (1), namely those which are not contained in (2) and (3); we call them  $H''$ . None of them has a diagonal part in our quasi-particle representation ( $\alpha_{ks}^* \alpha_{ks}$  diagonal), and it is convenient right away to diagonalize  $H^0 + H''$ :

$$S^{-1} (H^0 + H'') S = H^0 + h$$

( $h$  diagonal,  $\sim H''^2$ ). There are only three kinds of terms in the free-particle representation which can contribute to  $h$ ; apart from numerical factors and energy denominators, they involve the operators

$$O_1 = (a_\lambda^* a_\lambda) (a_\mu^* a_\mu) (a_\nu^* a_\nu) (a_\varrho^* a_\varrho) \quad (30)$$

$$O_2 = (a_\lambda^* a_\lambda) (a_\mu^* a_\mu) (a_{k-}^* a_{k+}^*) (a_{k'+} a_{k'-}) \quad (31)$$

$$O_3 = (a_{k-}^* a_{k+}^*) (a_{k'-}^* a_{k'+}^*) (a_{k''+} a_{k''-}) (a_{k''' +} a_{k''' -}) \quad (32)$$

(Greek indices stand for momentum and spin). For instance,  $O_2$  can arise from a linear combination of two terms like

$$a_\lambda^* a_\mu a_{k'-}^* a_{k+} \quad \text{and} \quad a_\lambda^* a_\mu a_{k-}^* a_{k'+}$$

occurring in  $H''$ , by multiplying them crosswise with their conjugates. Now,  $O_2$  actually simulates a BCS pair coupling of the type  $H_2(2)$ . When treated as perturbations, the matrix-elements  $O_2$  are 'dangerous' in the sense that they cause divergencies (for  $\Delta_k \rightarrow 0$ ; see section 4). They are more adequately accounted for by including them in  $H_2$  with  $a_\lambda^* a_\lambda$  and  $a_\mu^* a_\mu$  replaced by their thermal averages [see (20)]. This amounts to a *renormalization* of the coefficients  $J_{kk'}$  in (2). As to the terms  $O_3(32)$ , their contribution to the free energy is so small that they are meaningless unless one goes to higher approximations in  $H''$ . Therefore, after the renormalization of  $J_{kk'}$ ,  $h$  can be entirely identified with the terms of the type  $O_1$  (30). [Of course,  $O_1$  carries a factor  $V^{-2}$  and, because only three of the four momenta are independent,  $h_{av}$  will be proportional to  $V$ .]

The corrected free energy will be written

$$F = F^0 + f, \quad (33)$$

with  $f$  given by

$$\text{Tr} \exp [\beta (F^0 - H^0) + \beta (f - h)] = 0,$$

or in lowest approximation:

$$f = \text{Tr} (h \exp \beta (F^0 - H^0)) \equiv h_{av} \quad (34)$$

$H^0$  and  $F^0$  are again given by (15) and (17), (18), but in order to make optimum use of the approximation (34), we now want to minimize  $F$  instead of  $F^0(3)$ . Note that  $h_{av}$  [see (30) and (20)] depends on the trial functions only through  $E_k$ . Setting

$$\partial F / \partial \xi_{ks} = 0, \quad \partial F / \partial \eta_k = 0,$$

one sees immediately that in all Equations (22)–(27),  $\tau_k^0$  must be replaced by

$$\tau_k = - \partial (F' + f) / \partial E_k = \tau_k^0 - \partial h_{av} / \partial E_k. \quad (35)$$

Thus

$$2 \xi_{ks} = \tau_k \varepsilon_k / E_k, \quad 2 \eta_k = \tau_k \Delta_k / E_k, \quad (36)$$

$$\left. \begin{aligned} \Gamma_{ks} &= \Gamma_k = V^{-1} \sum_{k'} I_{kk'} \tau_{k'} \varepsilon_{k'} / 2 E_{k'}, \\ \Delta_k &= V^{-1} \sum_{k'} J_{kk'} \tau_{k'} \Delta_{k'} / 2 E_{k'}. \end{aligned} \right\} \quad (37)$$

Regarding the perturbation  $H'$  (6), we observe that (29) is now no longer rigorously true. However,  $(A_{ks})_{av}$  and  $(B_k)_{av}$  are still small as  $h$ , and hence the contribution of  $H'$  to the free energy is small as  $h^2$  (or even less) and must be neglected here.

Our approximation can only be meaningful if we find  $\tau_k$  close to  $\tau_k^0$ . To examine whether this is so, let us look at the limiting case of low temperatures.

For  $T = 0$ , of course, only the ground state (all  $\alpha_{ks}^* \alpha_{ks} = 0$ ) contributes:

$$\tau_k (T = 0) = 1 - \partial h_0 / \partial E_k \quad (38)$$

From the unperturbed ground-state or quasi-vacuum, only emission of quasi-particles is possible, hence the energy denominators in  $h_0$  are all negative  $[-(E_\lambda + E_\mu + E_\nu + E_\rho)]$ , and one sees easily that the differentiation of these denominators gives the predominant contributions to  $\partial h_0 / \partial E_k$ . Their sign is such that  $\tau_k < 1$ . Equation (37) then tells us that the perturbation  $h_0$  has the effect of replacing the pair coupling constant  $J$  ( $= \overline{J_{kk'}}$ ) by a smaller one

$$J_{eff} = J \tau = \overline{J_{kk'} \tau_{k'}}, \quad \tau < 1 \quad (39)$$

(averages taken over an energy shell  $|\varepsilon_k| < \omega$ , where  $\omega \gg \overline{\Delta}_k$  in the 'weak coupling case'). The usual analysis of Equation (37) then gives

$$\Delta = \overline{\Delta}_k \approx \omega \exp(-1/\gamma J \tau) \quad (40)$$

if  $J \tau > 0$ ; otherwise the trivial solution,  $\Delta_k = 0$ , takes over. While  $\tau < 1$  has the effect of making the 'gap'  $\Delta$  smaller, it should be remembered that we are now dealing with a renormalized  $J$  and a corrected density of states  $\gamma$  [see (28)]. The energy difference between the superconductive and normal ground-states is given by

$$(U - \sum_k E_k + h_0) - (U - \sum_k E_k + h_0)_{\Delta_k=0} \quad (41)$$

The perturbation  $h_0$  obviously depresses the normal state more effectively than the superconductive one.

In making order of magnitude estimates we have taken the  $H''$  matrix-elements of the general order  $J/V$  (like  $H_2$ ). In the weak coupling case ( $\Delta \ll \omega$ ) one finds  $\tau$  close to unity, namely

$$1 - \tau \sim (\gamma J)^2 \sim (\ln \omega / \Delta)^{-2}, \quad (42)$$

and also in (41), the term  $h_0 - (h_0)_{\Delta_k=0}$  is by a factor  $\sim (\gamma J)^2$  smaller than the other (unperturbed) terms. So far, the perturbation treatment of  $H''$  is apparently justified. It is, of course, conceivable that  $H''$  gives rise to collective effects which our method fails to detect, owing to the perturbational expansion. But in such a situation the whole basic pair-coupling idea of BCS would be in doubt.



Going to high temperatures,  $T \rightarrow \infty$ , we claim that  $\tau_k$ , like  $\tau_k^0$  (19), vanishes:

$$\tau_k(T = \infty) = 0. \quad (43)$$

Indeed,  $h_{av}$  tends to zero once  $T$  has become much larger than all energy denominators occurring in  $h$ . [Rewriting  $h_{av}$  as an expression symmetrical in 'initial' and 'intermediate' states, see Equation (63) in the *Appendix*, shows this most easily.] (43) is even true to *all* orders in  $H''$ , and presumably also to all orders in  $H' + H''$ . Anyway, within our approximation,  $\tau_k$  must be taken as zero for  $T \rightarrow \infty$ , with the implication that Equation (37), at sufficiently high temperatures, admits only the trivial solution  $\Delta_k = 0$ .

#### 4. The Phase Transition

We will then assume that a non-trivial solution of (37) exists only at temperatures below a certain critical temperature  $T_c$ . For  $h = 0$ , it is well known that  $\Delta$  ( $= \Delta_k$ ), as determined by Equation (27) with (19), goes to zero at  $T_c$  as  $(T_c - T)^{1/2}$ . We want to show that this remains true for the perturbed system.

$$\text{Let} \quad \Delta_k = \Delta \lambda_k \quad (44)$$

where  $\lambda_k$  approaches a finite value (of order 1) as  $\Delta \rightarrow 0$ . Now (37) can be written

$$-\frac{1}{2} V^{-1} \sum_k (J_{k'k} \lambda_k / \lambda_{k'}) \tau_k(E_k, T) / E_k = 1 \quad (45)$$

and, with  $E_k = (\Delta^2 \lambda_k^2 + \varepsilon_k^2)^{1/2}$ , this will determine  $\Delta$  as a function of  $T$ . If this function goes to zero continuously as  $T \rightarrow T_c$ , this value  $T_c$  defines the critical temperature:

$$-\frac{1}{2} V^{-1} \sum_k (J_{k'k} \lambda_k / \lambda_{k'}) \tau_k(|\varepsilon_k|, T_c) / |\varepsilon_k| = 1. \quad (46)$$

Both in (45) and (46), we transform the  $\mathbf{k}$ -sums into integrals over  $\varepsilon_k$  and then subtract (46) from (45). Since  $T \approx T_c$ , the factors  $J_{k'k} \lambda_k / \lambda_{k'}$  in the two integrands can be taken as practically the same, and this also applies to the respective densities of states, except possibly for terms small as  $[\Delta(T)]^2$ . Then, the essential factor in the integrand can be expanded:

$$\begin{aligned} \tau_k(E_k, T) / E_k - \tau_k(|\varepsilon_k|, T_c) / |\varepsilon_k| &\approx \\ [(E_k^2 - \varepsilon_k^2) \partial / \partial \varepsilon_k^2 + (T - T_c) \partial / \partial T_c] \tau_k(|\varepsilon_k|, T_c) / |\varepsilon_k| \end{aligned}$$

where the two terms are proportional to  $\Delta^2$  and to  $T - T_c$ , respectively. So, indeed

$$\Delta^2(T) = \Theta (T_c - T) \quad \text{for} \quad T \approx T_c, \quad (47)$$

with  $\Theta > 0$  [ $\Delta(T)$  real for  $T < T_c$ ].

One might object to this argument that in the region  $|\varepsilon_k| \gtrsim \Delta_k$  the expansion of the integrand in powers of  $\Delta^2$  is incorrect and that the integral actually may contain terms which do not vanish as strongly as  $\Delta^2$ . We shall prove in the *Appendix*, however, that for  $E_k \ll T$  [this is satisfied when  $E_k \lesssim \Delta(T) \rightarrow 0$ ] the function  $\tau_k(E_k, T)/E_k$  can be expanded into non-negative *even* powers of  $E_k$ . Then, (47) is obviously correct. It should be pointed out that the terms of type  $O_2$  (31) which we eliminated in section 3 by renormalizing  $J_{kk'}$  would have caused even an *infinity* to appear for  $\Delta \rightarrow 0$ . In this sense, they are 'dangerous matrix-elements' which we may not allow to occur in the perturbation  $\hbar$ .

It remains to discuss the free energy at temperatures close to  $T_c$ . Recall Equations (33) and (17):

$$F = U + F' + f \quad (48)$$

$U$ , as given by (10), is conveniently split into two terms [see (9) and (36)]

$$\left. \begin{aligned} U &= U_1 + U_2 \\ U_1 &= \frac{1}{2} V^{-1} \sum_{kk'} I_{kk'} (\tau_k \varepsilon_k / E_k) (\tau_{k'} \varepsilon_{k'} / E_{k'}) \\ U_2 &= \sum_k \Delta_k \eta_k = \frac{1}{2} \sum_k \Delta_k^2 \tau_k / E_k \end{aligned} \right\} \quad (49)$$

Let us define a function  $\phi$  of  $T$  and  $\Delta$  [see (44)] which becomes  $F$  if  $T$  and  $\Delta$  are linked by Equations (37) or (45) but, *if this equation is disregarded*, has  $T$  and  $\Delta$  as two *independent* variables:

$$\phi(T, \Delta(T)) = F(T), \quad (50)$$

$$\phi(T, \Delta) = U + F' + f. \quad (51)$$

Here, each term is meant to depend on  $T$  only through the Boltzmann factors [see (18), (34), (35)], and on  $\Delta$  through  $\Delta_k$  (44), as specified by all preceding equations *except* (45). Then, the validity of (50) is obvious. On the other hand substituting into (51) the 'trivial solution'  $\Delta = 0$ , one obtains the free energy of the 'normal state' (which is a fictitious state for  $T < T_c$ ):

$$\phi(T, 0) = F_n(T). \quad (52)$$

However, since we want to compare (50) and (52) for the same system, i.e. for a fixed total number of electrons, we have to admit an explicit  $\Delta$ -dependence of  $k_0^2/2m$  in  $\varepsilon_k$  (11):

$$k_0^2/2m = \mu(T, \Delta), \quad (53)$$

such that  $\mu(T, \Delta(T))$  and  $\mu(T, 0)$  are the correct chemical potentials of the two states:

$$\varepsilon_k = \hbar^2/2m - \mu(T, \Delta) + V^{-1} \sum_{k'} I_{kk'} (\tau_{k'} \varepsilon_{k'}/E_{k'}). \quad (54)$$

For other values of  $\Delta$ ,  $\phi$  has no specific physical meaning and, to be sure, it is *not* the quantity  $F$  which we have minimized (as a functional of  $\xi_{ks}, \eta_k$ ). Nevertheless, for small values of  $\Delta$ ,  $\phi$  can be expanded into powers of  $\Delta$ , and in particular, for temperatures just below  $T_c$  where  $\Delta(T)$  is small, we obtain from (50) and (52):

$$F(T) - F_n(T) = \sum_{j>0} \frac{1}{j!} \left( -\frac{\partial^j \phi(\tau, \Delta)}{\partial \Delta^j} \right)_{\Delta=0} [\Delta(T)]^j \quad (55)$$

while  $F(T) = F_n(T)$  for  $T \geq T_c$ .

Now examine the first derivative

$$\partial \phi(T, \Delta)/\partial \Delta = \sum_k \lambda_k \partial \phi / \partial \Delta_k. \quad (56)$$

In application to functions of the  $E_{k'}$  alone, like  $(F' + f)$  or  $\tau_k/E_k$ , we have\*)

$$\partial / \partial \Delta_k = \sum_{k'} E_{k'}^{-1} (\Delta_k \delta_{kk'} + \varepsilon_{k'} \partial \varepsilon_{k'} / \partial \Delta_k) \partial / \partial E_{k'}. \quad (57)$$

If one then writes down  $\partial(F' + f)/\partial \Delta_k$  using (35), several terms are seen to be cancelled by corresponding terms coming from  $\partial U_1/\partial \Delta_k$  and  $\partial U_2/\partial \Delta_k$  in (56). But two terms remain:

$$\left. \begin{aligned} \partial \phi(T, \Delta)/\partial \Delta &= X_1 + X_2 \\ X_1 &= (\sum_k \tau_k \varepsilon_k / E_k) \partial \mu(T, \Delta) / \partial \Delta \\ X_2 &= \frac{1}{2} \sum_k \Delta_k^2 \partial (\tau_k / E_k) / \partial \Delta \end{aligned} \right\} \quad (58)$$

With (44) and (57), one sees easily that  $X_2$  is proportional to  $\Delta^3$  and therefore leads to a term  $j = 4$  in the expansion (55). Indeed, the predominant term in  $X_2$  is

$$X_2 = \Delta^3 \frac{1}{2} \sum_k \lambda_k^4 E_k^{-1} \partial (\tau_k / E_k) / \partial E_k + \cdots (< 0) \quad (59)$$

The integral appearing here converges for  $\Delta \rightarrow 0$  against a finite value, including the contribution of the region  $|\varepsilon_k| \gtrsim \Delta_k$ , by the same argument as was invoked above (*Appendix*). Thus, if the term  $X_1$  in (58) could be ignored,  $F(T) - F_n(T)$  would be proportional to  $[\Delta(T)]^4$  or  $(T_c - T)^2$ , for  $T$  approaching  $T_c$  from below, and this would characterize the phase transition as one of the second order ( $\partial F / \partial T$  continuous,  $\partial^2 F / \partial T^2$  discontinuous at  $T_c$ ).

\*) Note that, at this point a  $k$ -sum is not yet considered as an integral over  $\varepsilon_k$ . This makes it easier to take account of the  $\Delta$ -dependence of the density of states. (Clarifying comments by Dr. Y. NAMBU are gratefully acknowledged.)

However, the term  $X_1$ , which originates in the rigorous treatment of the selfenergy  $H_1$ , may give rise to a term  $j = 2$  in (55), thereby changing the order of the transition from second to *first*. Moreover, the  $\mathbf{k}$ -sum in  $X_1$  (58) is cut-off dependent, and we have to invoke a new physical argument, outside the scope of our approximation, to specify the cut-off. Here we want to exploit the observation made by BARDEEN<sup>4</sup>) that the coherent superposition of electron wave functions which is implied in the quasi-particle transformation (12) and in all subsequent equations based on (12), is meaningful only if the lifetime of the corresponding excited electron states  $\pm k$  is long enough to allow the particles to travel through the coherence distance. Since the decay rate (imaginary part of  $E_k$ ) increases with  $|\varepsilon_k|$ , there will be a limited 'zone of coherence', say  $k_1 < k < k_2$ , in the vicinity of the Fermi surface ( $k = k_F$ ), where the coherent electron pairing takes place as described, whereas outside of this zone our approximation is insufficient, and the best we can do is to set  $\Delta_k = 0$  there. This provides the necessary cut-off prescription, e.g. in (57) and (58). Then, we have approximately, for  $T$  approaching  $T_c$  from below:

$$F(T) - F_n(T) = \sum_{(k_1, k_2)} (\tau_k \varepsilon_k / E_k)_{\Delta=0} [\mu(T, \Delta(T)) - \mu(T, 0)] + \dots \quad (60)$$

This may contain a term *linear* in  $T_c - T$  which then determines the 'heat of condensation',  $W$ .

The difficulty in computing  $W$  stems from the fact that it is the *dissymmetry* in the properties of excitations with  $k > k_F$  and  $k < k_F$  which governs the quantities in Equation (60), indeed not only the  $\mathbf{k}$ -sum appearing explicitly but also similar sums occurring in  $\mu$  [see (54)]. One would have to know the *difference* in the lifetimes of 'electrons' and 'holes' at about equal distance from the Fermi surface! On the other hand, just because only the dissymmetries contribute, we can expect  $W$  to be small (compared with the area under the specific-heat curve) if the zone of coherence is sufficiently narrow ( $k_2 - k_1 \ll k_F$ ). Nevertheless, there seems to be no obvious reason for  $W$  to vanish *exactly* (even for the 'unperturbed' system:  $H'' = 0$ ). We must therefore anticipate that there exists a non-vanishing latent heat, though it may be too small to be easily measurable.

### Appendix

Labeling the eigenstates of  $H^0$  by a suffix  $N$ , we have

$$h_N = \sum_{N'} |(N' | H'' | N)|^2 (H_N^0 - H_{N'}^0)^{-1}. \quad (61)$$

Each virtual process  $N \rightarrow N'$  consists of the emission or absorption of 4 quasi-particles. In view of (35), we are interested in those terms of  $h$  where one of those 4 quasi-particles is either  $k +$  or  $-k -$ . This part of  $h$  will be called  $h_k$ ; it is volume-independent ( $V \rightarrow \infty$ ). Furthermore, in

each term of  $h_k$ , we are interested only in those factors which depend on  $E_k$ . Remembering that only terms of the type  $O_1$  (30) were to be retained in  $h$ , such factors all originate in  $a_{ks}^* a_{ks}$  and the energy denominators. From (12) it follows that the  $E_k$  dependence of an individual term in (61) is given by

$$v_h^2 \alpha_{ks}^* \alpha_{ks} (E_k - Q)^{-1} + v_h^2 \alpha_{-k-s}^* \alpha_{-k-s} (-E_k - Q)^{-1}$$

where  $Q$  is the energy change of the other 3 quasi-particles participating in the special virtual process. Adding the  $k+$  and  $-k-$  contributions and inserting (13) and (16), one obtains

$$(E_k^2 - Q^2)^{-1} [(Q + \varepsilon_k) + (E_k + Q\varepsilon_k/E_k) n_k]. \quad (62)$$

In the corresponding term in the free energy (34), the thermal average (19) is to be taken. Then, for  $E_k \ll T$  and  $Q \gg E_k$ , the result can be expanded into non-negative *even* powers of  $E_k$ .

As to the contributions  $Q \gtrsim E_k$ , we avoid the singularity in (62) by symmetrizing  $(h_k)_{av}$  in initial and intermediate states:

$$\Sigma_N h_N \exp(-\beta H_N^0) = \frac{1}{2} \Sigma_{NN'} \frac{|(N' | H'' | N)|^2}{H_N^0 - H_{N'}^0} [\exp(-\beta H_N^0) - \exp(-\beta H_{N'}^0)] \quad (63)$$

In other words, whereas in (62) we have already summed over  $N'$  for each  $N$ , we here go back and first symmetrize in every pair of states  $N, N'$ . Now, in the terms with  $Q \gtrsim E_k \ll T$ , (63) can be expanded in powers of *both*  $\beta E_k$  and  $\beta Q$ , and the denominators can be cancelled out. Then one sees easily that the *odd* powers of  $E_k$  appear always multiplied either with  $(n_k n'_k)$  which vanishes identically, or with odd powers of  $n_k$  or  $n'_k$  which vanish in the average (to be taken with  $\beta = 0$ ).

This proves that, whatever the value of  $Q$ , all terms contributing to  $f_k = (h_k)_{av}$  can be expanded into non-negative *even* powers of  $E_k$ . Then, however, the same is true for the functions

$$\tau_k/E_k = -E_k^{-1} \partial(F' + f)/\partial E_k \quad \text{and} \quad E_k^{-1} \partial(\tau_k/E_k)/\partial E_k.$$

This justifies the statements made in section 4, in the discussion of the Equations (47) and (59).

### References

- 1) J. BARDEEN, L. N. COOPER, J. R. SCHRIEFFER, Phys. Rev. *108*, 1175 (1957).
- 2) N. N. BOGOLIUBOV, D. B. ZUBAREV, Iu. A. TSERKOYNIKOV, Doklady, Academy of Sciences U.S.S.R. *117*, 788 (1957).
- 3) As suggested by J. R. SCHRIEFFER (private communication).
- 4) J. BARDEEN, Cambridge Conference on Superconductivity, June-July 1959 (unpublished).



# The Volume Dependence of the Electron Level Density and the Critical Temperature in Superconductors

by J. L. Olsen and H. Rohrer

Institut für Kalorische Apparate und Kältetechnik  
Eidgenössische Technische Hochschule, Zürich

**Abstract** Experimental work on the volume dependence of the critical magnetic field in superconductors and on the volume change at the transition is summarized and discussed. The best values for  $\beta \ln T_c$ ,  $\beta \ln v$  and  $d \ln \gamma / d \ln v$  ( $T_c$  = transition temperature,  $\gamma T$  = electronic specific heat per mole,  $v$  = molar volume) are estimated.  $\beta \ln \gamma / \beta \ln v$  is many times greater than the free electron value. No correlation between  $\beta \ln T_c$ ,  $\beta \ln v$  and  $d \ln \gamma / d \ln v$  could be seen, but the relation  $\beta \ln T_c + \beta \ln v = \text{const.} \ln \theta / T_c$  is approximately obeyed for the soft superconductors ( $\theta$  = Debye temperature).

## 1. Introduction

This paper is a summary of some experiments on superconductivity. It appears in this memorial volume because it was a question of PAULI's about a possible change in sound velocity in superconductors which started the experiments leading to our share of the work described here. Our first experiment in this series was a search, in collaboration with BÄUMER, for a change in sound velocity at the superconducting transition<sup>1</sup>. Since no change was seen we examined the difference in modulus of rigidity statically<sup>2</sup>, and then embarked on a closely related investigation of the difference in volume between the normal and superconducting states.

From such measurements the pressure dependence of the superconducting critical field can be calculated with an accuracy which in many cases is superior to that obtained by direct measurements. As a further step one may calculate two quantities of interest for solid state theory. These are the volume dependence of the superconducting transition temperature, and of the density of states at the Fermi level in the normal metal. The first of these ought to be calculable from any theory which is to explain superconductivity, and the other should be calculable for metals where enough is known about the electronic energy states.

Apart from the volume change work carried out here a great number of direct measurements of the pressure dependence of the critical field have been made in other laboratories. Unfortunately, there are wide

discrepancies between the various results, and one is left in some doubt about which may safely be compared with theoretical conclusions. It seems time, therefore, to summarize all existing work in this field, and to try to indicate its reliability.

## 2. Results

The calculation of the pressure dependence of the critical magnetic field,  $H_c$ , and the further calculation of the volume dependence of the electronic specific heat,  $\gamma T$ , per mole and of the critical temperature,  $T_c$ , from experimental data have been discussed sufficiently elsewhere<sup>3</sup>). Here we shall just recapitulate the final result.

We write  $H_c = H_0 f(t)$  where  $t = T/T_c$ , and we assume that  $f(t)$  is a function which is unaltered by the deformation. Then

$$\frac{v}{H_0} \cdot \frac{\partial H_c}{\partial v} = \frac{v}{H_0} \cdot \frac{\partial H_0}{\partial v} (f(t) - t f'(t)) + \frac{1}{2} \left\{ \frac{v}{\gamma} \frac{\partial \gamma}{\partial v} - 1 \right\} t f'(t) \quad (1)$$

where  $v$  is the molar volume.

Clearly then, we only need  $\partial H_c / \partial p$  at  $T = 0$ , and at  $T = T_c$  to evaluate the following two quantities which have been called  $g$  and  $s$  in previous papers:

$$s = d \ln T_c / d \ln v \quad \text{and} \quad g = d \ln \gamma / d \ln v. \quad (2)$$

The assumption that the form of  $f(t)$  is independent of deformation cannot be completely true, but it is a good enough approximation as SWENSON<sup>4</sup>) has shown recently. Once theory and experiment become sufficiently refined to take into account multiple, and possibly anisotropic energy gaps, then this assumption may have to be abandoned.

In the table we have listed all measurements of  $(\partial H_c / \partial p)_{T=0}$  and  $(\partial H_c / \partial p)_{T=T_c}$  known to us. Many different techniques have been used: direct hydrostatic pressure using liquid helium or hydrogen as a pressure transmitting fluid, ice bomb, uniaxial tension of single crystals, and observations of length changes on destruction of superconductivity. These latter have been done using a bifilar strip<sup>26</sup>), an optical lever or a condenser for indicating the change in length. In general, the direct  $\partial H_c / \partial p$  measurements are more reliable near  $T = T_c$  than at lower temperatures, while the values derived from length changes (the work by CODY, MÜLLER and ROHRER, OLSEN and ROHRER, and ROHRER) are good near  $T = 0$  but have an uncertainty proportional to  $H_c^{-1}$  so that they become poor close to  $T_c$ .

In the cubic metals and in polycrystalline specimens of anisotropic metals

$$\frac{\partial H_c}{\partial p} = 3 \frac{\partial H_c}{\partial p_\theta} \quad (3)$$

	Author		$(\partial H_c / \partial p)_{T=0}$ Oersted dyn <sup>-1</sup> cm <sup>2</sup> × 10 <sup>-9</sup>	$(\partial H_c / \partial p)_{T=T_c}$	$\frac{d \ln T_c}{d \ln v}$	$\frac{d \ln}{d \ln}$
Lead	K L S <sup>5)</sup>			< -6		
	H M <sup>6)</sup>			-9.6 ± 0.2		
	O R <sup>3)</sup>		-6.3 ± 0.3	-11.0 ± 1.0		1.8
	CODY <sup>7)</sup>		-9.1 ± 0.5	-10.9 ± 1.1		
	B J <sup>38)</sup>		$dT_c/dp = -4.5 \pm 0.5 \times 10^{-n\uparrow}$			
	M G <sup>39)</sup>		-7.8 ± 0.2	-9.06 ± 0.15	3.2 ± 0.1	6
Vanadium	M R <sup>8)</sup>		2.7 ± 0.2	4.1 ± 0.3	-3.5 ± 0.4	-0.4
Lanthanum	ROHRER <sup>14)</sup>	$T_c = 4.3^\circ \text{K}$	5.5 ± 0.5	1.1 ± 0.3	-0.5 ± 0.2	-3.4
		$T_c = 4.6^\circ \text{K}$	6.2 ± 0.5	1.8 ± 0.3		
Tantalum	K S L <sup>9)</sup>			< 0		
	HATTON <sup>10)</sup>		$dT_c/dp = -0.4 \pm 0.15^\dagger$			
	FISKE <sup>11)</sup>			-3.5 ± 0.4		
	O R <sup>3)</sup>		7.0 ± 2.0	-4.0 ± 3.0		
	BOWEN <sup>12)</sup>		$dT_c/dp = -0.24 \pm 0.05^\dagger$			
	CODY <sup>7)</sup>			-2.6 ± 0.4		
	J S <sup>13)</sup>		$dT_c/dp = -0.26^\dagger$		1.5 ± 0.1	
	ROHRER <sup>14)</sup>	Ta II	-2.1 ± 0.3	-2.1 ± 0.3		
	S H <sup>40)</sup>		-1.1 ± 0.2	-0.9 ± 0.05		4.0
$\alpha$ Mercury	K S L <sup>9)</sup>			< 0		
	GRENIER <sup>16)</sup>		-4.8	-6.8		
			-0.4 ± 0.4	-4.0 ± 0.4		
		⊥	-2.2 ± 0.3	-1.4 ± 0.4		
	HATTON <sup>10)</sup>			-7.5 ± 2.0		
	FISKE <sup>11)</sup>		-6.8 ± 0.8	-8.3 ± 0.2		
	ROHRER <sup>14)</sup>		-7.7 ± 0.5	-5.7 ± 0.5	3.3 ± 0.7	10.2
			-0.9 ± 0.2	-3.9 ± 0.2	4.1 ± 0.4	9.7
		⊥	-3.4 ± 0.4	-0.9 ± 0.4	3.0 ± 0.6	11.0
	S S <sup>41)</sup>		-7.25 ± 0.1	-7.7 ± 0.1	[3.6 ± 0.1]	[6.2 ± 0.1]
$\beta$ Mercury	S S <sup>17)</sup>			-7.5		
	S S <sup>41)</sup>		-7.1 ± 0.2	-8.7 ± 0.2	[6.1 ± 0.2]	[6.1 ± 0.2]
Tin	S O <sup>15)</sup>			-4.5		
	K L S <sup>5)</sup>		-4.6	-8.7 ± 0.3		
	C J <sup>37)</sup>			-6.3		
	GRENIER <sup>16)</sup>		-5.0 ± 0.4	-6.4 ± 0.3	7.5 ± 0.5	1.7 ± 0.5
			-3.8 ± 0.2	-6.0 ± 0.2	13.2 ± 0.5	2.8 ± 0.5
		⊥	-0.6 ± 0.3	-0.2 ± 0.2	5.6 ± 0.5	1.2 ± 0.5
	G M <sup>18)</sup>			-6.6 ± 0.3		
	MUENCH <sup>19)</sup>		-4.2 ± 0.6	-6.9 ± 0.3		
	HATTON <sup>10)</sup>			-6.3 ± 0.5		
	O R <sup>3)</sup>		$(\partial H_c / \partial p)_0 / (\partial H_c / \partial p)_{T_c} = 0.58$			
	FISKE <sup>11)</sup>		-5.0 ± 1.0	-6.48 ± 0.14		
	CODY <sup>7)</sup>		-3.2 ± 0.6	-9.1 ± 0.9		
	J S <sup>13)</sup>			-7.3		
	B J <sup>38)</sup>		$dT_c/dp = -4.4 \pm 0.3^\dagger$			

	Author		$(\partial H_c/\partial p)_{T=0}$ Oersted dyn <sup>-1</sup> cm <sup>2</sup> × 10 <sup>-9</sup>	$(\partial H_c/\partial p)_{T=T_c}$	$\frac{d \ln T_c}{d \ln v}$	$\frac{d \ln \gamma}{d \ln v}$
Illum	S O <sup>15)</sup>			-6.2		
	K L S <sup>5)</sup>		-4.9 ± 0.3	-7.6 ± 0.2		
	MUENCH <sup>19)</sup>		-4.8 ± 0.7	-6.2 ± 0.5		
	HATTON <sup>10)</sup>			-5.9 ± 0.6		
	O R <sup>3)</sup>		-3.4 ± 0.5	-5.8 ± 0.8		
	CODY <sup>7)</sup>		-4.53 ± 0.17	-5.8 ± 0.43		
		⊥ calc.	-0.09 ± 0.09	-0.22 ± 0.22		
	J S <sup>13)</sup>			-6.8	[5.2]	
Illum	ROHRER <sup>20)</sup>		-3.6 ± 0.2	-6.8 ± 0.3	5.1 ± 0.4	1.0 ± 0.2
			-3.4 ± 0.2	-6.6 ± 0.3	5.3 ± 0.4	1.0 ± 0.2
		⊥	-0.2 ± 0.1	-0.3 ± 0.1	5.0 ± 0.4	1.0 ± 0.2
	L K <sup>21)</sup>			0.8		
	MUENCH <sup>19)</sup>			0.8 ± 0.4		
	HATTON <sup>10)</sup>		$dT_c/dp = 1.5 \pm 0.4^\dagger$			
	O R <sup>3)</sup>	mainly	0	-2.0 ± 0.4		
		mainly ⊥	-0.8 ± 0.6	2.1 ± 0.3		
Illum	FISKE <sup>11)</sup>		2.7 ± 0.5	3.1 ± 0.15	[-2.5 ± 0.2]	[-4.2 ± 0.6]
	CODY <sup>7)</sup>		1.83 ± 0.4	1.09 ± 0.3		
		calc.	-4.35 ± 0.8	-2.63 ± 0.5		
		⊥ calc.	3.09 ± 0.3	1.86 ± 0.2		
	B J <sup>38)</sup>		$dT_c/dp = 0.4^\dagger$			
	MUENCH <sup>19)</sup>			-3.3 ± 0.3		
	GRENIER <sup>22)</sup>			-3.7 ± 0.3	12.5 ± 2	
	OLSEN <sup>23)</sup>		$(\partial H_c/\partial p)_0/(\partial H_c/\partial p)_{T_c} = 3$			
Illum	OLSEN <sup>41)</sup>		-3.0 ± 0.4	-4.7 ± 0.3		7 ± 5
	OLSEN <sup>42)</sup>		-1.4 ± 0.2	-1.6 ± 0.3	5 ± 1	7 ± 5
Illum	A G <sup>24)</sup>		-1.3 ± 0.3	-3.2 ± 0.5	[24 ± 4]	[-9 ± 4]

Where  $(dT_c/dp)$  is given the units are 10<sup>-11</sup> deg dyn<sup>-1</sup> cm<sup>2</sup>; [] Values marked thus are for hydrostatic pressure.

Authors: A G ALEKSEEVSKII and GAIDUKOV; B J BOWEN and JONES; C J CHESTER and JONES; G M GARBER and MAPOTHER; H M HAKE and MAPOTHER; J S JENNINGS and SWENSON; K L S KAN, LASAREW and SUDOVSTOV; K S L KAN, SUDOVSTOV and LASAREW; K LASAREW and KAN; M G MAPOTHER and GARFINKEL; M R MÜLLER and ROHRER; R OLSEN and ROHRER; S O SIZOO and ONNES; S S SCHIRBER and SWENSON.

where  $p$  stands for a hydrostatic pressure and  $p_\theta$  is a uniaxial pressure in direction  $\theta$ . In anisotropic single crystals  $\partial H_c/\partial p_\theta$  is anisotropic, too. The table therefore gives data both for  $\partial H_c/\partial p$  for hydrostatic pressure and the extreme values of  $\partial H_c/\partial p_\theta$  parallel and perpendicular to the axis of symmetry of the crystal. These are indicated by || and ⊥ respectively, while the values corresponding to hydrostatic pressure are un-

marked. The errors shown have been estimated from the scatter of the observations. It seems likely that much greater systematic errors are present in some cases.

For some of the metals a few brief remarks are needed: *Lanthanum* has two crystallographic modifications (f. c. c. and h. c. p.). The measurements shown are on polycrystals of which the first contained roughly equal quantities of both phases, while the second was mainly cubic. The observed critical temperatures were too low and indicate the presence of magnetic impurities which may also influence the pressure effect (BALTENSPERGER<sup>27</sup>) and ROHRER<sup>14</sup>)).

The *Tantalum* results have been the cause of a good deal of discussion, and there now is little doubt that those due to SWENSON are the most reliable. SWENSON has frequently pointed out<sup>28</sup>) the great importance of using specimens of high purity having sharp transitions even when length changes are used for deducing  $\partial H_c/\partial p$ . This is especially true for the hard superconductors, and of these, tantalum has been the most striking example of the errors which may be caused if poor specimens are used.

In *Thallium*  $T_c$  increases with pressure up to about 2500 atmospheres, and then decreases. The values of  $\partial H_c/\partial p$  listed are for  $p \rightarrow 0$ . The measurements marked || and  $\perp$  are for preferentially oriented specimens but it is not known how close the values are to the || and  $\perp$  values for single crystals.

For *Aluminium* the measurements leading to a value for  $\partial H_c/\partial p$  at  $T = 0$  were made using adiabatic demagnetization and an ice bomb technique to obtain the pressure. They must be regarded as at best preliminary, and used with extreme caution.

In *Cadmium* recent work by one of us indicates an anisotropy in  $\partial H_c/\partial p_\theta$ .

In the table we have also listed the two dimensionless quantities  $s = d \ln T_c / d \ln v$  and  $g = d \ln \gamma / d \ln v$  where  $v$  is the volume change considered. The volume changes considered here are not, however, those corresponding to hydrostatic pressure or uniaxial pressures because these volume changes are complicated and uninteresting physically<sup>20</sup>). Instead, the values for  $s$  and  $g$  given are for equal dilatations in all three directions, and for uniaxial dilatations where one dimension of the crystal is changed leaving the two dimensions at right angles unaltered. The results of uniaxial dilatation parallel and perpendicular to the main crystalline symmetry axis are shown on the lines in the table marked || and  $\perp$  respectively. It should be noted that the anisotropies thus obtained are different from, and in general less than those associated with uniaxial pressures. To avoid confusion we have only calculated  $s$  and  $g$  for those measurements we consider most accurate. The errors indicated are fairly conservative.



### 3. The Volume Dependence of the Density of States near the Fermi Level

$\gamma T$  is given by

$$\gamma T = (2/3) \cdot \pi^2 k^2 N(0) T \quad \text{erg/mole deg.} \quad (4)$$

where  $N(0)$  is the density of states at the Fermi surface and  $k$  is the Boltzmann constant. In the case of free electrons we have

$$N(0) \propto v^{\frac{2}{3}} n_a^{\frac{1}{3}} \quad (5)$$

where  $v$  is the molar volume, and  $n_a$  the number of free electrons per atom. We thus find that generally  $d \ln \gamma / d \ln v = d \ln N(0) / d \ln v$ , and that for free electrons  $g = 2/3$ . This is also the value obtained for more complex electronic structures where the Fermi surface overlaps Brillouin zone boundaries if the rigid-band approximation holds. In this approximation it is assumed that the number of electrons in each zone is unaltered by the deformation, and that the relative position of the Fermi surface is unaltered. This may not seem a very drastic assumption since the total number of states per mole of metal within each zone is independent of the shape of the unit cell of the crystal. A look at the values of  $g$  in the table, however, shows that this assumption must be far from correct in most of the metals investigated. It seems highly unlikely that more accurate experiments can reduce  $g$  to  $2/3$  in all cases.

An explanation of anomalous  $g$  values may, however, be given if it is assumed that the energy gap at the Brillouin zone is sensitive to changes in the lattice parameter. Such changes are of course to be expected and ROHRER<sup>14)</sup> has shown that the smaller the overlap into higher zones the larger will  $g$  become. It seems that this may explain the large value of  $g$  in Aluminium where the recently published models of the Fermi surface suggest that very small pockets are present in the higher zones<sup>29) 30)</sup>.

In the case of tantalum the newer measurements yield results much less startling than those published previously. The extreme sensitivity of the physical properties of tantalum to impurities would still seem to indicate that the Fermi level in tantalum must lie close to some anomaly in the density of states curve.

It is unfortunate that no other reliable methods are available at present for measuring  $g$ . Only in the case of aluminium would there be some slight hope of detecting a change in specific heat with pressure at low temperatures, and an investigation of the change in magnetic susceptibility with pressure would appear fairly hopeless. The only field where related information can be found is in the pressure dependence of the electrical resistivity where a great deal of experimental data is available. Unfortunately, however, we have been unable to find any clear cut correlation between these and the results of the type of work described in the present paper.

#### 4. The Volume Dependence of the Critical Temperature

The volume dependence of the critical temperature is best discussed in the light of BARDEEN, COOPER and SCHRIEFFER'S<sup>31)</sup> well known formula

$$k T_c = 1.14 \hbar \omega \exp (-1/N(0)V) \quad (6)$$

where  $\omega$  is a characteristic phonon frequency,  $N(0)$  the density of states at the Fermi surface, and  $V$  an interaction energy.

It is of course well known from work on the isotope effect that a formula of this type reproduces the effect of changes of the lattice vibration frequencies correctly, and it is interesting to try to make use of it in interpreting the effect of volume change on  $T_c$ . On differentiating we find<sup>32)</sup>

$$\frac{d \ln T_c}{d \ln v} - \frac{d \ln \omega}{d \ln v} = \frac{1}{N(0)V} \frac{d \ln N(0)V}{d \ln v} \quad (7)$$

Here we have moved  $-d \ln \omega / d \ln v$  which is actually GRÜNEISEN'S constant,  $\gamma_G$ , to the left of the equality, in order to isolate on the right hand side the term which contains the interesting physics of the BCS theory. It is here that physically significant correlations might be expected.

It is natural to suppose that the volume dependence of  $N(0)V$  should in some way be connected with that of  $N(0)$ . This is also the result obtained by MOREL<sup>33)</sup> who has carried out a theoretical calculation of the volume dependence of  $N(0)V$ . He found that changes in  $N(0)$  should be the main factor in determining  $d \ln N(0)V / d \ln v$ , and he obtained reasonable agreement with the experimental data then available. More experimental work has been done since, and it unfortunately appears that it has now become more difficult to reconcile MOREL'S calculation with the experimental results.

One is therefore tempted to look for purely empirical relations amongst the observations. ROHRER<sup>14)</sup> has recently pointed out that

$$d \ln N(0)V / d \ln v \approx 2$$

for all the soft superconductors except thallium and cadmium which are both strongly anisotropic. An equivalent statement of this relation is that  $s + \gamma_G$  which equals  $d \ln (T_c / \theta) / d \ln v$  is proportional to  $\ln (\theta / T_c)$  where  $\theta$  is the Debye temperature. In Figure 1 we have plotted  $s + \gamma_G$  against  $\ln (\theta / T_c)$  for the soft superconductors, and it will be seen that all except thallium lie approximately on a straight line. The failure of the correlation for thallium and cadmium need not be taken too seriously since we cannot calculate  $d \ln T_c / d \ln v$  for uniform deformation for either of these metals and we have had to use data for hydrostatic pressure. The results on zinc were obtained too late to be included in Figure 1. They fall a little below the line.

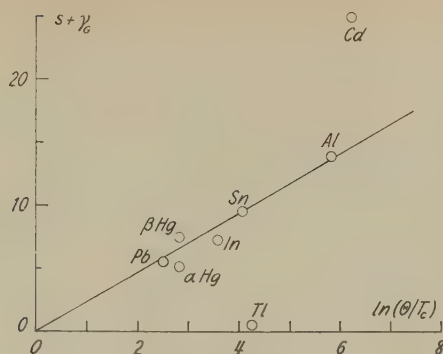


Fig. 1

$(s + \gamma_G) \equiv d \ln(T_c/\theta)/d \ln v$   
 plotted against  $\ln(\theta/T_c)$  for the soft superconductors

If we can trust the results we have collected for  $d \ln \gamma/d \ln v$  then such a correlation means that the changes in transition temperature with volume are almost independent of the changes in the density of states. On the other hand DAUNT'S<sup>34)</sup> and LEWIS'S<sup>35)</sup> correlations and MATTHIAS'S<sup>36)</sup> work on alloys has shown that the critical temperatures of different superconductors are at least to some extent connected with the density of states.

The authors' thanks are due to Professor Dr. P. GRASSMANN, the Director of the Institut für Kalorische Apparate und Kältetechnik der Eidg. Technischen Hochschule, for his constant support, and to Professors C. A. SWENSON and D. E. MAPOTHER for sending us manuscripts and experimental results prior to publication. This work was supported financially by an 'Arbeitsbeschaffungskredit des Bundes'.

### References

- 1) H. BÖMMEL and J. L. OLSEN, Phys. Rev. *91*, 1017 (1953).
- 2) J. L. OLSEN, Nature *175*, 37 (1955).
- 3) J. L. OLSEN and H. ROHRER, Helv. Phys. Acta *30*, 49 (1957).
- 4) C. A. SWENSON, Solid State Physics (Ed. F. Seitz) (1960).
- 5) L. S. KAN, B. G. LASAREW and A. I. SUDOVSTOV, J. Exptl. Theoret. Phys. (U.S.S.R.) *18*, 825 (1948).
- 6) R. R. HAKE and D. E. MAPOTHER, J. Phys. Chem. Solids *1*, 199 (1956).
- 7) G. D. CODY, Phys. Rev. *111*, 1078 (1957).
- 8) J. MÜLLER and H. ROHRER, Helv. Phys. Acta *31*, 289 (1958).
- 9) L. S. KAN, A. I. SUDOVSTOV and B. G. LASAREW, Doklady Akad. Nauk S.S.S.R. *69*, 173 (1949).
- 10) J. HATTON, Phys. Rev. *103*, 1167 (1956).
- 11) M. D. FISKE, J. Phys. Chem. Solids *2*, 191 (1957).
- 12) D. H. BOWEN, Proc. 5<sup>th</sup> Internat. Conf. Low Temp. Physics and Chemistry 337 (Madison 1958).

- 13 L. D. JENNINGS and C. A. SWENSON, *Phys. Rev.* **112**, 31 (1958).
- 14 H. ROHRER, Thesis, *Helv. Phys. Acta* **33**, 675 (1960).
- 15 H. G. SIZOO and H. K. ONNES, *Leiden Comm.* 1806 (1925).
- 16 C. GRENIER, *Compt. rend.* **241**, 862 and **240**, 2302 (1955).
- 17 J. F. SCHERRER and C. A. SWENSON, *Phys. Rev. Letters* **2**, 246 (1959).
- 18 M. GORRER and P. F. MAFOTHER, *Phys. Rev.* **94**, 1065 (1954).
- 19 N. L. MUENCH, *Phys. Rev.* **99**, 1814 (1955).
- 20 H. ROHRER, *Phil. Mag.* **4**, 1207 (1959).
- 21 S. S. LASAREN and A. S. KAN, *J. Exptl. Theoret. Phys. (U. S. S. R.)* **14**, 435 (1944).
- 22 C. GRENIER, Thesis, Paris (1956).
- 23 J. L. OLSEN, *Helv. Phys. Acta* **32**, 310 (1959).
- 24 N. E. ALKSHVUSKII and Y. I. P. GAIKONOV, *Dokl. Akad. Nauk S. S. R.* **29**, 808 (1955).
- 25 C. GRENIER, K. SEONLIN and C. F. SQUINE, *Physica* **19**, 833 (1953).
- 26 S. S. LASAREN and A. I. STERNSTEIN, *Dokl. Akad. Nauk S. S. R.* **69**, 345 (1949).
- 27 W. BALTENBERGER, *Helv. Phys. Acta* **32**, 197 (1959).
- 28 C. A. SWENSON, Cambridge Superconductivity Conference 1959 unpublished.
- 29 V. HEINE, *Proc. Roy. Soc. A* **240**, 340 (1957).
- 30 W. A. HARRISON, *Phys. Rev.* **116**, Sec. Series No. 3 (1959).
- 31 J. BARDEEN, L. N. COOPER and J. R. SCHRIFFER, *Phys. Rev.* **108**, 1175 (1957).
- 32 F. LUTHE and H. ROHRER, *Helv. Phys. Acta* **31**, 204 (1958).
- 33 N. MOREL, *J. Phys. Chem. Solids* **10**, 277 (1959).
- 34 J. G. DAUNT, *Phys. Rev.* **80**, 911 (1950).
- 35 H. W. LEWIS, *Phys. Rev.* **101**, 939 (1956).
- 36 B. T. MATTHIAS, *Progr. Low Temp. Physics* **2**, 138 (1955).
- 37 P. F. CHESTER and G. U. JONES, *Phil. Mag.* **42**, 1151 (1953).
- 38 T. H. BOWEN and G. U. JONES, *Proc. Roy. Soc. A* **254**, 522 (1960).
- 39 P. F. MAFOTHER and M. GARFINKEL, to be published.
- 40 C. A. SWENSON and C. H. HINKLENS, to be published in *Proceedings of Toronto Low Temperature Conference* (1960).
- 41 J. E. SCHERRER and C. A. SWENSON, *ibid.*
- 42 J. L. OLSEN, to be published in *«Cryogenics»*.

# Long range interactions between magnetic moments in semiconductors

by **W. Baltensperger** and **A. M. de Graaf**

(Laboratorium für Festkörperphysik, ETH, Zürich)

*Summary:* The interaction between magnetic moments embedded in a non degenerate electron gas is calculated. In the fully degenerate gas the RUDERMAN, KITTEL interaction applies whereas in the Boltzmann gas the interaction is ferromagnetic only and of comparatively long range. Between these extreme cases the behaviour changes gradually. In a semiconductor an additional interaction comes from the virtual excitations of the valence band. These two interactions and the magnetic dipole interaction may be of comparable magnitude in dilute magnetic semiconducting alloys.

## 1. Introduction

PAULI<sup>1)</sup> treated the spin susceptibility of a degenerate free electron gas for the case of a uniform external magnetic field. His work has been extended to finite temperatures<sup>2)</sup>. The space dependence of the spin polarisation due to a localized magnetic field has been calculated by RUDERMAN, KITTEL<sup>3)</sup> and YOSIDA<sup>4)</sup>. In the present paper this will be considered for a non degenerate electron gas.

Localized actions on the spins of conduction electrons are caused by the electron exchange with magnetic ions or by the hyperfine interaction with magnetic nuclei. The resulting polarisation of the electron gas leads to an interaction between magnetic ions or nuclei. Such interactions were described by FRÖHLICH, NABARRO<sup>5)</sup>, VONSOVSKII<sup>6)</sup>, RAMSEY, PURCELL<sup>7)</sup> and RUDERMAN, KITTEL<sup>3)</sup>. In a semiconductor the non degenerate electron gas also gives rise to such coupling between magnetic moments. This will be evaluated and compared with the effect of the polarisation of the valence band due to virtual interband transitions<sup>8),9)</sup>.

## 2. Polarisability of the non degenerate electron gas

We consider a system of magnetic ions or nuclei at positions  $\mathbf{R}_j$  and with spins  $\mathbf{S}_j$ , which act on an electron with coordinate  $\mathbf{r}$  and spin  $s$  as an external potential

$$\sum_j -2J(\mathbf{x} - \mathbf{R}_j)(\mathbf{s} \cdot \mathbf{S}_j). \quad (1)$$

Using Bloch waves

$$\varphi_{\mathbf{k}\sigma} = V^{-1/2} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{x}} u_{\mathbf{k}}(\mathbf{x}) \cdot \eta_{\sigma} \quad (2)$$



we define

$$J(\mathbf{k}, \mathbf{k}') = \Omega^{-1} \int e^{i(\mathbf{k}-\mathbf{k}')\mathbf{x}} u_{\mathbf{k}'}^*(\mathbf{x}) u_{\mathbf{k}}(\mathbf{x}) J(\mathbf{x}) d\mathbf{x} \quad (3)$$

where  $\Omega$  is the volume of the atomic cell. In particular for a point interaction

$$J(\mathbf{x}) = J_0 \Omega \delta(\mathbf{x}) \quad (4)$$

(3) becomes

$$J(\mathbf{k}, \mathbf{k}') = J_0 u_{\mathbf{k}'}^*(0) u_{\mathbf{k}}(0). \quad (5)$$

With a development of the electron field in Bloch waves the interaction energy takes the form<sup>10), 4)</sup>

$$H' = -N^{-1} \sum_{\mathbf{k}'} \sum_{\mathbf{k}} \sum_j J(\mathbf{k}, \mathbf{k}') e^{i(\mathbf{k}-\mathbf{k}')\mathbf{R}_j} \left\{ (a_{\mathbf{k}'}^{\dagger} a_{\mathbf{k}} - a_{\mathbf{k}'}^{\dagger} a_{\mathbf{k}}) S_j^z + \right. \\ \left. a_{\mathbf{k}'}^{\dagger} a_{\mathbf{k}} S_j^- + a_{\mathbf{k}'}^{\dagger} a_{\mathbf{k}} S_j^+ \right\} \quad (6)$$

where  $N = V/\Omega$  is the number of atoms.  $a_{\mathbf{k}\pm}^{\dagger}$  and  $a_{\mathbf{k}\pm}$  are creation and destruction operators for electrons with wave-vector  $\mathbf{k}$  and spin + or -.

The polarisation  $P = n_+ - n_-$ , where  $n_{\pm}$  is the density of electrons with + and - spin respectively, is obtained by perturbation theory to second order<sup>4)</sup>

$$P(\mathbf{x}) = \sum_j P_j(\mathbf{x}) \quad (7)$$

$$P_j(\mathbf{x}) = - \left. \begin{aligned} & \frac{2 S_j^z}{N^2 \Omega} \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} u_{\mathbf{k}}^*(\mathbf{x}) u_{\mathbf{k}'}(\mathbf{x}) \frac{J(\mathbf{k}, \mathbf{k}')}{E(\mathbf{k}) - E(\mathbf{k}')} \\ & \cdot e^{-i(\mathbf{k}-\mathbf{k}')(\mathbf{x}-\mathbf{R}_j)} \cdot f(\mathbf{k}) \{1 - f(\mathbf{k}')\} + c. c. \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

where  $f(\mathbf{k})$  is the Fermi-Dirac distribution function.

The interaction energy up to second order is<sup>4), 10)</sup>

$$E' = \sum_i \sum_j A_{ij} (\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j) \quad (9)$$

$$A_{ij} = \frac{2}{N^2} \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} \frac{|J(\mathbf{k}, \mathbf{k}')|^2}{E(\mathbf{k}) - E(\mathbf{k}')} e^{i(\mathbf{k}-\mathbf{k}')(\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j)} f(\mathbf{k}) \{1 - f(\mathbf{k}')\}. \quad (10)$$

$P_j(\mathbf{R}_i)$  and  $A_{ij}$  are related to each other. Let  $\overline{J u^2}$  represent a weighted average of  $J(\mathbf{k}, \mathbf{k}') u_{\mathbf{k}}^*(0) u_{\mathbf{k}'}(0)$  in (8) and  $\overline{J^2}$  a weighted average of  $|J(\mathbf{k}, \mathbf{k}')|^2$  in (10), then

$$A_{ij} / \overline{J^2} \Omega = -P_j(\mathbf{R}_i) / 2 \overline{J u^2} S_j^z. \quad (11)$$

It should be noted that  $P(\mathbf{x})$  does not imply a variation of the total charge density, since the excess of plus spin electrons equals at every point the deficiency of minus spin electrons. Therefore correlation effects will not appear in this approximation. If, however, spin independent interactions are considered, correlation effects would have to be included<sup>11)</sup>.

### 3. Evaluation of the integrals

We suppose that the energy is of the form

$$E(\mathbf{k}) = \frac{\hbar^2}{2} \left( \frac{k_x^2}{m_x} + \frac{k_y^2}{m_y} + \frac{k_z^2}{m_z} \right) \quad (12)$$

and introduce the variables

$$\kappa_x = k_x m_x^{-1/2}, \dots, \kappa_x = R_x m_x^{+1/2}, \dots, \quad (13)$$

Since terms in  $f(\mathbf{k}) f(\mathbf{k}')$  cancel, (10) becomes

$$A = \frac{4 \bar{J}^2}{N^2 \hbar^2} \sum_{\kappa, \kappa'} \frac{e^{i(\kappa - \kappa') \cdot \boldsymbol{\varrho}}}{\kappa^2 - \kappa'^2} f(\kappa) \quad (14)$$

where we have dropped the index  $ij$  in  $A_{ij}$  and  $\boldsymbol{\varrho}_{ij} = \boldsymbol{\varrho}_i - \boldsymbol{\varrho}_j$ . With polar coordinates the integration over the angles gives

$$A = \frac{\bar{J}^2 \Omega^2 m_x m_y m_z}{\pi^4 \hbar^2 \varrho^2} \int_0^\infty d\kappa \int_0^\infty d\kappa' \kappa \kappa' \frac{\sin(\kappa \varrho) \sin(\kappa' \varrho)}{\kappa^2 - \kappa'^2} f(\kappa). \quad (15)$$

After integration over  $\kappa'$  by principal parts

$$A(\varrho, \eta) = - \frac{\bar{J}^2 \Omega^2 m_x m_y m_z k_B T}{4 \pi^3 \hbar^4 \varrho^2} G(\varrho, \eta) \quad (16)$$

$$G(\varrho, \eta) = \frac{\hbar^2}{k_B T} \int_0^\infty d\kappa \kappa \sin(2 \kappa \varrho) f(\kappa). \quad (17)$$

Here

$$f(\kappa) = \left[ c \frac{\hbar^2 \kappa^2}{2 k_B T} - \eta + 1 \right]^{-1} \quad (18)$$

so that (17) becomes

$$G(\alpha, \eta) = \int_0^\infty d\kappa \sin(\alpha \kappa^{1/2}) [e^{\kappa - \eta} + 1]^{-1} \quad (19)$$

where

$$\alpha = 2 (2 k_B T)^{1/2} \hbar^{-1} \varrho. \quad (20)$$

This integral has been tabulated as a function of  $\alpha$  for some values of  $\eta$  using the electronic computer of the ETH.

In the following limiting cases the integral is elementary. For a *degenerate gas*,  $\eta \rightarrow \infty$ , the formula of RUDERMAN and KITTEL is obtained

$$A(\varrho, \infty) = - \frac{\bar{J}^2 \Omega^2 m_x m_y m_z}{4 \pi^3 \hbar^2 \varrho^2} \int_0^{\kappa_F} d\kappa \kappa \sin(2 \kappa \varrho) \quad (21)$$

$$A(\varrho, \infty) = -\frac{\bar{J}^2 \Omega^2 m_x m_y m_z}{16 \pi^3 \hbar^2 \varrho^4} [\sin(2 \kappa_F \varrho) - 2 \kappa_F \varrho \cos(2 \kappa_F \varrho)] \quad (22)$$

where  $\hbar^2 \kappa_F^2/2$  is the top of the energy surface. In the other extreme for the Boltzmann gas,  $\eta \rightarrow -\infty$ ,

$$f(\kappa) = e^\eta e^{-\hbar^2 \kappa^2/2k_B T} \quad (23)$$

$$A(\varrho, -\infty) = -\frac{\bar{J}^2 \Omega^2 m_x m_y m_z}{4 \pi^3 \hbar^2 \varrho^2} e^\eta \int_0^\infty d\kappa \kappa \sin(2 \kappa \varrho) e^{-\hbar^2 \kappa^2/2k_B T} \quad (24)$$

$$= -\frac{\bar{J}^2 \Omega (m_x m_y m_z)^{1/2} n}{2 \pi \hbar} \frac{1}{\varrho} e^{-2k_B T \varrho^2/\hbar^2}. \quad (25)$$

The density of particles  $n$  is related to  $\eta$  through

$$n = \frac{(m_x m_y m_z)^{1/2}}{2 \pi^2} \left( \frac{2 k_B T}{\hbar^2} \right)^{3/2} F_{1/2}(\eta) \quad (26)$$

where  $F_{1/2}$  is a tabulated<sup>2)</sup> function. In particular

$$F_{1/2}(\eta \rightarrow -\infty) = \frac{\sqrt{\pi}}{2} e^\eta. \quad (27)$$

#### 4. Discussion of the results

The RUDERMAN, KITTEL function (22) oscillates and diminishes with distance. The interaction between two magnetic moments in a degenerate electron gas is therefore alternately ferromagnetic and antiferromagnetic. The corresponding function (25) for the Boltzmann case falls off as a Gaussian curve at large distances. The resulting interaction is ferromagnetic for all distances. It is weaker, however, with comparatively long range  $(2 k_B T)^{-1/2} \hbar$ . The oscillation of (22) comes from the sharp cut off of the integration, which is replaced by a gradual decrease of the integrand with  $\kappa$  in (24).

As examples of *intermediate cases* Figure 1 shows  $G(\varrho, \eta)$  for four values of  $\eta$ . Detailed tables of this integral will be published in a forthcoming paper. It can be seen that the curve for  $\eta = 4$  resembles the Ruderman, Kittel function, whereas for  $\eta = -2$  the behaviour of the Boltzmann case is obtained. Note that  $G(\varrho, \infty)$  plotted in the units of Figure 1 would have vanishing range and  $G(\varrho, -\infty)$  vanishing amplitude.

The interaction  $A$  is given as a function of

$$\varrho = (m_x R_x^2 + m_y R_y^2 + m_z R_z^2)^{1/2} \quad (28)$$

Hence the surfaces of equal interaction energy in real space are ellipsoids, the long axes pointing into the direction of small effective mass.

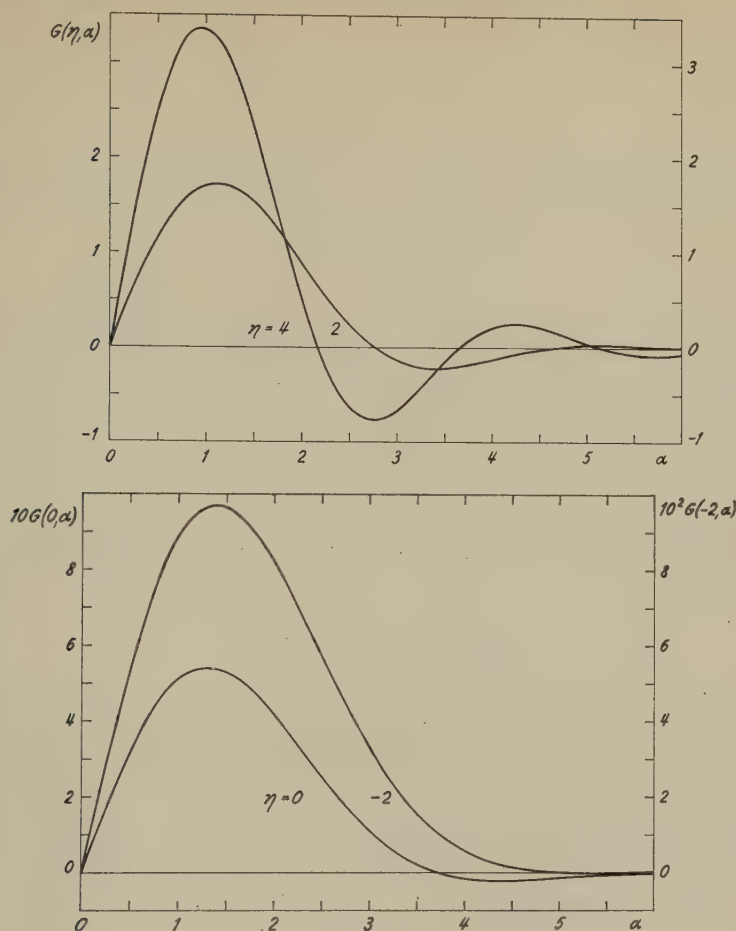


Fig. 1

Distance dependence of  $\varrho^2$  times the interaction between magnetic moments in an electron gas for some values of the degeneracy  $\eta$

The polarisation due to a point source can be related to that produced by a homogeneous field. The energy of an electron in the field  $F$  is given by  $-F s_z$  (for a magnetic induction  $B_z$  we must take  $F = g \mu_B B_z$ , where  $g$  is the spectroscopic splitting factor and  $\mu_B$  the negative Bohr magneton).  $F$  can be written as a superposition of point fields

$$F = \frac{F}{(-2 J_0 \Omega S^z)} \int (-2 J_0 \Omega S^z) \delta(\mathbf{x}) d\mathbf{x}. \quad (29)$$

Since the polarisation  $P_j(\mathbf{x}, \eta)$  caused by a point field at position  $\mathbf{R}_j$  is proportional to  $J_0$  via  $J(\mathbf{k}, \mathbf{k}') = J_0 u_{\mathbf{k}'}(\mathbf{R}_j) u_{\mathbf{k}}(\mathbf{R}_j)$  the polarisation due

to a homogeneous field can be expressed as an integral over point field polarisations:

$$P(\mathbf{x}, \eta) = -\frac{F}{2 J_0 \Omega S_j^2} \int P_j(\mathbf{x}, \eta) d\mathbf{R}_j. \quad (30)$$

If we assume that  $u_{\mathbf{k}}(\mathbf{x})$  is independent of  $\mathbf{k}$  and use equations (11), (13) and (16) this reduces to

$$P(\mathbf{x}, \eta) = \frac{F(m_x m_y m_z)^{1/2} \overline{u^2(\mathbf{x})} k_B T}{\pi^2 \hbar^4} \int_0^\infty G(\varrho, \eta) d\varrho. \quad (31)$$

$\overline{u^2}$  actually is a function of  $\mathbf{x}$  indicating the variation of  $P(\eta)$  within each cell. For the Ruderman, Kittel case (31) reduces to the Pauli spin paramagnetism

$$P(\infty) = F \overline{u^2} \nu \quad (32)$$

where

$$\nu = \kappa_F (m_x m_y m_z)^{1/2} / 2 \pi^2 \hbar^2 \quad (33)$$

is the level density per unit volume at the Fermi surface. In the Boltzmann case

$$P(-\infty) = F \overline{u^2} n / 2 k_B T \quad (34)$$

the expression for the Curie law is obtained.

### 5. Interactions by virtual excitations from the valence band

The interaction between magnetic moments via a non degenerate electron gas may have an influence in semiconductors. Since the conduction electrons form a dilute gas of particles with low kinetic energy, the interaction is weak but of long range, whereas the valence electrons are capable of producing strong short range interactions.

This second interaction may be pictured as arising from the polarisation of the system of valence electrons. It is included in the expressions (8) and (10) if we allow  $\mathbf{k}$  and  $\mathbf{k}'$  to run through both the valence and conduction bands.  $u_{\mathbf{k}}$  is a different function for the two bands. We shall consider the contribution coming from a full valence and an empty conduction band.

An evaluation of the integrals for a realistic case is not elementary. Models have been proposed<sup>8), 9)</sup> in which

$$-E(\mathbf{k}) + E(\mathbf{k}') = E_g + \frac{\hbar^2}{2 m_h} k^2 + \frac{\hbar^2}{2 m_e} k'^2 \quad (35)$$

where  $E_g$  is the direct optical energy gap and  $m_h$  and  $m_e$  are respectively the effective masses of valence and conduction electrons. Note that if the summation is extended to infinity for both  $\mathbf{k}$  and  $\mathbf{k}'$ , the resulting integral does not exist, unless special prescriptions for the integration are followed.



BLOEMBERGEN and ROWLAND<sup>8)</sup> assume the valence band to be narrow compared to  $E_g$  and neglect  $(\hbar^2/2 m_h) k^2$  in (35). The integration over  $k$  is cut off at  $k_t$ , where

$$k_t = 2\pi (3/4 \pi \Omega)^{1/3} \quad (36)$$

while that over  $k'$  goes from 0 to  $\infty$  to include contributions from higher bands. They obtain an interaction of the form (9) where

$$A_{ij} = -\frac{\bar{J}^2 \Omega^2 m_e}{2\pi^3 \hbar^2 R_{ij}^4} [\sin(k_t R_{ij}) - k_t R_{ij} \cos(k_t R_{ij})] e^{-\frac{(2m_e E_g)^{1/2}}{\hbar} R_{ij}}. \quad (37)$$

The polarisation (8) now is a sum over the functions  $v_k(\mathbf{x}) u_{k'}(\mathbf{x}) e^{-i(\mathbf{k}-\mathbf{k}')\cdot\mathbf{x}}$ , where  $v_k e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{x}}$  and  $u_{k'} e^{i\mathbf{k}'\cdot\mathbf{x}}$  are Bloch functions of the valence and conduction band respectively. Since these Bloch functions are all orthogonal (even for  $\mathbf{k} = \mathbf{k}'$ ) the polarisation assumes positive and negative values in each cell. Therefore the polarisation for a homogeneous field (30) vanishes. This also follows directly from the fact that a homogeneous field has vanishing matrix elements for interband-transitions. This means that there is no direct spin contribution to the van Vleck paramagnetism.

## 6. Numerical applications

For a dilute system of magnetic impurities embedded in a semiconductor, the numerical values of the various interactions are estimated in Table I for a semiconductor like germanium. We take  $m_x = m_y = m_z = m_h = m_e = 1/10 m$ ,  $\Omega = 2.24 \cdot 10^{-23} \text{ cm}^3$ , and  $E_g = 0.8 \text{ eV}$ . The parameters which still can be varied are the distance between two magnetic ions  $R$ , the temperature  $T$  and the degeneracy  $\eta$  or the density of con-

Table I

Numerical values for the various interactions: the interaction via conduction electrons  $A$ , the envelope to the interaction due to the valence band  $A'$ , and the magnetic dipole interaction estimated as  $A'' = \mu_B^2/R^3$

$R$	10				40				$\bar{A}$
	100		500		100		500		$^\circ \text{K}$
$T$	2	-1	2	-1	2	-1	2	-1	
$A$	$4.3 \cdot 10^{17}$	$5.0 \cdot 10^{16}$	$4.8 \cdot 10^{18}$	$5.6 \cdot 10^{17}$	$4.3 \cdot 10^{17}$	$5.0 \cdot 10^{16}$	$4.8 \cdot 10^{18}$	$5.6 \cdot 10^{17}$	$\text{cm}^{-3}$
$\bar{J}^2$	$4.3 \cdot 10^{-8}$	$5.1 \cdot 10^{-9}$	$4.2 \cdot 10^{-7}$	$5.2 \cdot 10^{-8}$	$6.4 \cdot 10^{-9}$	$8.8 \cdot 10^{-10}$	$1.2 \cdot 10^{-9}$	$2.0 \cdot 10^{-9}$	$\frac{\text{eV}}{[\text{J in eV}]}$
$\bar{J}^2$	$3.5 \cdot 10^{-5}$				$7.1 \cdot 10^{-9}$				$\frac{\text{eV}}{[\text{J in eV}]}$
$\eta$	$5.4 \cdot 10^{-8}$				$8.4 \cdot 10^{-10}$				$\text{eV}$

duction electrons  $n$ . The exchange integral  $J$  between a magnetic inner shell and a conduction electron may be a few tenths of an electron volt.

Table I shows that for  $R = 10 \text{ \AA}$  the interaction via the valence band dominates, whereas for  $40 \text{ \AA}$  the various interactions considered may be of comparable magnitude. It may be noted that  $A$  increases with the density of the conduction electrons and with their effective mass. To obtain the density of conduction electrons used in Table I doping is necessary.

In a paramagnetic resonance experiment, the interactions give rise to a line width. For one Bohr magneton the energy of  $6.7 \cdot 10^{-8} \text{ eV}$  corresponds to a width of one Oersted. The actual line shape involves the simultaneous interaction of many magnetic moments, a problem which has not been treated here.

### 7. Acknowledgments

The authors thank Professor G. BUSCH, whose experimental work stimulated this research. One of us (A. M. DE G.) is indebted to Professor R. KRONIG, Delft, who was instrumental in facilitating his stay at the ETH. The work profited from many discussions with S. YUAN. H. R. SCHWARZ of the Institute of Applied Mathematics of the ETH carried out the tabulation of the integral. We are grateful to the Verein zur Förderung der Festkörperphysik an der ETH (W. B.), to the Schweizerische Schultat and the Battelle Memorial Institute (A. M. DE G.) for financial support.

### References

- 1) W. PAULI, *Z. Physik* **41**, 81 (1927).
- 2) J. McDUGALL and E. C. STONER, *Philos. Trans. A* **237**, 67 (1938).
- 3) M. A. RUDERMAN and C. KITTEL, *Phys. Rev.* **96**, 99 (1954).
- 4) K. YOSIDA, *Phys. Rev.* **106**, 893 (1957).
- 5) H. FRÖHLICH and F. R. N. NABARRO, *Proc. Phys. Soc. (London) A* **175**, 382 (1940).
- 6) S. V. VONSOVSKII, *Jour. Exp. Theor. Phys.* **16**, 981 (1946).
- 7) N. F. RAMSEY and E. M. PURCELL, *Phys. Rev.* **85**, 143 (1952).
- 8) N. BLOEMBERGEN and T. J. ROWLAND, *Phys. Rev.* **97**, 1679 (1955).
- 9) R. G. SHULMAN, J. M. MAYS, and D. W. MCCALL, *Phys. Rev.* **100**, 692 (1955).
- 10) T. KASUYA, *Progr. Theoret. Phys. (Japan)* **16**, 45 (1956).
- 11) J. S. LANGER and S. H. VOSKO, *J. Phys. Chem. Solids* **12**, 196 (1960).

# Magnetische Suszeptibilität von Ge-Si-Mischkristallen

von **G. Busch** und **O. Vogt**

(Laboratorium für Festkörperphysik, ETH, Zürich)

*Summary.* Magnetic susceptibilities as a function of temperature have been measured between 300 and 1200°K for a set of 34 Ge-Si mixed crystal samples. Assuming an ellipsoidal structure of the conduction band edge and two concentric spheres for the valence band edge it is possible to compare our results with measurements of cyclotron resonance and magnetoresistance. We are able to calculate effective masses for holes and electrons over the whole concentration range. Using the deformation potential formula it is furthermore possible to visualize the change of energy band edges as a function of composition.

## 1. Einleitung

Messungen der Suszeptibilität haben sich als sehr erfolgreich erwiesen zur Erforschung von Halbleitereigenschaften. Der grosse Vorteil der Suszeptibilitätsmessungen liegt darin begründet, dass die Suszeptibilität ein statisches Phänomen darstellt und demzufolge prinzipiell unabhängig von der Kenntnis der Beweglichkeiten eines Halbleiters ausgewertet werden kann.

Dabei wird angenommen, dass die Suszeptibilität eines idealen Eigenhalbleiters sich in zwei additive Teile zerlegen lässt:

$$\chi = \chi_G + \chi_L,$$

wobei  $\chi_G$  den Anteil des Gitters darstellt und  $\chi_L$  denjenigen der Leitungselektronen bzw. der Löcher. Für den  $\chi_L$ -Anteil gaben BUSCH und MOOSER<sup>1) 2)</sup> eine für nicht entartete Halbleiter gültige Formel an:

$$\chi_L = \frac{\mu^2}{3 q k T} n_i \left( 6 - \overline{\left( \frac{m}{m_n} \right)^2} - \overline{\left( \frac{m}{m_p} \right)^2} \right)$$

$\mu$  = Bohrsches Magneton

$k$  = Boltzmannsche Konstante

$q$  = Dichte

$T$  = absolute Temperatur

$n_i$  = Inversionsdichte

$m_{n,p}$  = Effektive Massen der Elektronen bzw. Löcher

Der Faktor  $(6 - \overline{(m/m_n)^2} - \overline{(m/m_p)^2})$ , der nur für das Zweibändermodell eines Halbleiters richtig ist, wird Anlass zu eingehender Diskussion geben. Nach den Überlegungen von BUSCH und MOOSER<sup>1) 2)</sup> sollte der Anteil  $\chi_G$  bei höheren Temperaturen konstant bleiben. Auf Grund ihres

Modelles ist es den Autoren jedenfalls gelungen, die Suszeptibilitätsmessungen an grauem Zinn befriedigend zu erklären. Diese Theorie liess sich nicht ohne weiteres auf Messungen an Ge und Si übertragen, wie sie nebst anderen von BUSCH und HELFER<sup>3)</sup> und STEVENS und CRAWFORD<sup>4)</sup> publiziert worden sind.

Ganz offensichtlich nimmt bei Ge das diamagnetische  $\chi_G$  linear mit der absoluten Temperatur ab und  $\chi_L$  tritt erst bei Temperaturen über etwa 700° K merklich in Erscheinung. Bei Si ist ebenfalls  $\chi_G$  linear von  $T$  abhängig und  $\chi_L$  äussert sich überhaupt nie merklich. Während durch eine Arbeit von ENZ<sup>5)</sup> eindeutig erwiesen wurde, dass bei Ge tatsächlich  $\chi_L$  in Erscheinung tritt und sich aus den gemessenen  $\chi_L$  in vernünftiger Weise Halbleiterparameter errechnen lassen, fehlt bis heute für den linearen Zusammenhang zwischen  $\chi_G$  und  $T$  eine restlos befriedigende Theorie (vgl. etwa die Bemerkungen von KRUMHANSEL und BROOKS<sup>6)</sup>).

Es war deshalb naheliegend, zur weiteren Abklärung der Verhältnisse die Mischkristallreihe Ge-Si zu untersuchen, in der Hoffnung, über  $\chi_G$  (Tiefemperaturast) und die eindeutige Bestimmung von  $\chi_L$  (Hochtemperaturast) nähere Aufschlüsse zu erhalten. Zudem sind magnetische Untersuchungen bei dieser Mischkristallreihe auch deshalb besonders angebracht, weil die Beweglichkeiten infolge der auftretenden Zwischenband- und Unordnungsstreuung sehr schwer zu erfassen sind.

In einer früheren vorbereitenden Arbeit<sup>7)</sup> ist die Herstellung der Proben eingehend beschrieben. Mit Hilfe elektrischer Messungen wurde die Inversionsdichte  $n_i$  bestimmt, deren Kenntnis die Auswertung magnetischer Daten wesentlich erleichtert. Zudem werden wir uns in der vorliegenden Arbeit auch auf die Messungen der Breiten der verbotenen Zonen und der Beweglichkeiten als Funktion der Si-Konzentration stützen müssen, wie sie ebenfalls in der oben erwähnten Arbeit angegeben sind.

## 2. Theoretische Grundlagen

### a) Suszeptibilität im Eigenleitungsgebiet für das Zweibandmodell

Wir bezeichnen in den folgenden Ausführungen etwas unkorrekt die spezifische Suszeptibilität mit  $\chi/g$  und die Volumensuszeptibilität mit  $\chi/\text{cm}^3$ . In cgs-Einheiten gilt dann, wenn wir Nichtentartung voraussetzen, für die spezifische Suszeptibilität im Eigenleitungsgebiet:

$$\chi_L = \frac{\mu^2}{3 \rho k T} n_i \left( 6 - \overline{\left( \frac{m}{m_n} \right)^2} - \overline{\left( \frac{m}{m_p} \right)^2} \right).$$

Dabei ist  $\overline{\left( \frac{m}{m_{n,p}} \right)^2}$  folgendermassen definiert:

$$\overline{\left( \frac{m}{m_{n,p}} \right)^2} = \frac{1}{3} \cdot \left( \frac{m}{m_{xx}} \cdot \frac{m}{m_{yy}} - \overline{\left( \frac{m}{m_{xy}} \right)^2} \right),$$

wobei

$$\frac{m}{m_{r,s}} = \frac{4 \pi^2 m}{\hbar^2} \frac{\partial^2 E(k)}{\partial k_r \partial k_s}$$

ist.

$k$  = Wellenzahl.       $\hbar$  = Plancksches Wirkungsquantum.

$E(k)$  = Energie der Elektronen im Kristallgitter.

Gemittelt wird über alle besetzten Energiezustände. Für uns wird es sich darum handeln, den Faktor  $(6 - \overline{(m/m_n)^2} - \overline{(m/m_p)^2})$  auf Grund der Kenntnis der Inversionsdichte  $n_i$  zu berechnen.

### b) Bandmodell für Ge und Si

Wir wählen wie ENZ<sup>5)</sup> für Ge und Si folgendes Bandmodell: Das Leitungsband bestehe aus  $N$  entarteten Ellipsoiden auf den (111) bzw. (100) Achsen. Unsere Messungen der Inversionsdichte<sup>7)</sup> ergeben, wenn man die effektiven Massen aus den Werten der Zyklotronresonanz berechnet, dass für Ge  $N = 4$  und für Si  $N = 6$  am wahrscheinlichsten ist. Die effektiven Massen sind anisotrop, doch zeigen Messungen der Zyklotronresonanz, dass gilt:  $m_1 = m_2 = m_t$  (transversal) und  $m_3 = m_l$  (longitudinal),  $m_1, m_2, m_3$  sind dabei die effektiven Massen bezüglich der Tensorhauptachsen. Wir führen zusätzlich den Begriff der Elliptizität  $\varepsilon = m_l/m_t$  ein. Das Valenzband wird beschrieben durch zwei konzentrische Kugelflächen verschiedener Krümmung, mit dem Zentrum im Punkte  $k = 0$ . Die effektiven Massen sind  $m_-$  und  $m_+$ . Wir definieren das Krümmungsverhältnis  $\gamma = m_-/m_+$ . Nach ENZ<sup>5)</sup> gilt

$$n = 2 N m_t m_l^{1/2} \left( \frac{2 \pi k T}{\hbar^2} \right)^{3/2} e^{\frac{\xi - E_{0n}}{k T}},$$

verglichen mit der üblichen Form

$$n = 2 \left( \frac{2 \pi m_n k T}{\hbar^2} \right)^{3/2} e^{\frac{\xi - E_{0n}}{k T}}.$$

Durch Vergleich entsprechender Grössen erhalten wir mit der Definition  $m_n = m'_n \cdot N^{2/3}$  ( $m'_n$  ist die gemittelte effektive Masse für ein einzelnes Ellipsoid)

$$m'_n = (m_t^2 \cdot m_l)^{1/3}.$$

Analog erhält man auch

$$m_p = (m_+^{3/2} + m_-^{3/2})^{2/3}.$$

Diese Werte setzen wir in die von ENZ gefundene Beziehung für die Suszeptibilität ein. Wir erhalten daraus sofort, wenn wir die Suszeptibilität in der Form

$$\chi_L = \frac{\mu^2}{3 q k T} n_i \left( 6 - \overline{\left( \frac{m}{m_n} \right)^2} - \overline{\left( \frac{m}{m_p} \right)^2} \right)$$



schreiben, die Beziehungen

$$\left(\frac{m}{m_n}\right)^2 = \left(\frac{1}{m_i^2} + \frac{2}{m_i \cdot m_l}\right) \frac{m^2}{3}; \quad \left(\frac{m}{m_p}\right)^2 = \frac{m_+^{-1/2} + m_-^{-1/2}}{m_+^{3/2} + m_-^{3/2}} m^2.$$

Wir führen nun die Grössen  $\varepsilon$  und  $\gamma$  ein und erhalten damit

$$\left(\frac{m}{m_n}\right)^2 = \left(\frac{m}{m'_n}\right)^2 \frac{1}{3} (\varepsilon^{2/3} + 2\varepsilon^{-1/3}); \quad \left(\frac{m}{m_p}\right)^2 = \left(\frac{m}{m'_p}\right)^2 (1 + \gamma^{-1/2}) (1 + \gamma^{3/2})^{1/3}.$$

### c) Dreibandmodell für Ge-Si Mischkristalle

GLICKSMAN<sup>8)</sup> hat gezeigt, dass im Konzentrationsbereich 10–25 At% Si offensichtlich zwei Leitungsbänder mit leicht verschiedener Aktivierungsenergie wirksam sind. Wir nehmen deshalb folgendes Bandmodell an:

Ein Leitungsband 1 habe seinen untern Rand bei der Energie  $E_1$ . Die Breite der verbotenen Zone sei entsprechend  $\Delta E_1$ . Die Multiplizität sei  $N_1$  und die, geometrisch gemittelte, effektive Masse  $m_1'$ . Genau gleich wird auch ein zweites Band angenommen mit entsprechenden Indices. Für die Elektronenkonzentrationen  $n_1$  und  $n_2$  gilt dann

$$n_1 = \text{const } N_1 m_1'^{3/2} e^{\frac{\zeta - E_1}{kT}}, \quad n_2 = \text{const } N_2 m_2'^{3/2} e^{\frac{\zeta - E_2}{kT}}$$

und für die Löcherkonzentration

$$p = \text{const } m_p^{3/2} e^{\frac{E_v - \zeta}{kT}}.$$

Die Neutralitätsbedingung lautet

$$n_1 + n_2 = p.$$

Wir bilden das Produkt

$$(n_1 + n_2) p = (\text{const})^2 m_p^{3/2} \left( N_1 m_1'^{3/2} e^{-\frac{\Delta E_1}{kT}} + N_2 m_2'^{3/2} e^{-\frac{\Delta E_2}{kT}} \right).$$

Unsere früheren elektrischen Messungen<sup>7)</sup> haben gezeigt, dass sich Ge-Si Mischkristalle befriedigend auch mit dem Zweibandmodell beschreiben lassen. (Vgl. dazu eine entsprechende Bemerkung von MADELUNG<sup>9)</sup>.) Man beobachtet offensichtlich eine über beide Leitungsbänder gemittelte Inversionsdichte  $\langle n_i \rangle$ . (Mittelung über die beiden Leitungsbänder wird in diesem Abschnitt durch das Symbol  $\langle \rangle$  bezeichnet.) Die wirksame Breite der verbotenen Zone liegt zwischen  $\Delta E_1$  und  $\Delta E_2$  und wir bezeichnen sie mit  $\langle \Delta E \rangle$ . Um Analogie mit dem Zweibandmodell herzustellen, müssen wir noch das Produkt  $\langle m_n'^{3/2} \cdot N \rangle$  über beide Bänder mitteln. Für die Inversionsdichte gilt dann

$$\langle n_i^2 \rangle = (\text{const})^2 m_p^{3/2} \langle m_n'^{3/2} N \rangle e^{-\frac{\langle \Delta E \rangle}{kT}}.$$

Infolge der Beziehung  $\langle n_i \rangle = n_1 + n_2$  erhalten wir

$$\langle m_n'^{3/2} N \rangle = \frac{N_1 m_1'^{3/2} e^{-\frac{\Delta E_1}{k T}} + N_2 m_2'^{3/2} e^{-\frac{\Delta E_2}{k T}}}{e^{-\frac{\langle \Delta E \rangle}{k T}}}.$$

Dieser Mittelwert ist temperaturabhängig. Nur wenn die Differenz  $E_2 - E_1$  von der Größenordnung  $kT$  ist, sind beide Teilbänder wirksam. Wegen dieser Bedingung aber strebt der Mittelwert mit steigender Temperatur rasch einem Grenzwert zu. Aus diesem Grunde lassen sich bei Leitfähigkeits- und Halleffektmessungen im Eigenleitungsgebiet keine Hinweise auf die Wirksamkeit zweier Leitungsbänder finden. Dagegen hat GLICKSMAN<sup>8)</sup>, wie schon erwähnt, bei der magnetischen Widerstandsänderung deutliche Anomalien gefunden. Wir werden weiterhin sehen, dass für Ge-Si Mischkristalle im kritischen Gebiet  $m_1'$  ungefähr gleich gross ist wie  $m_2'$ .

Hingegen ist die Multiplizität der beiden Teilbänder eindeutig und wesentlich verschieden. Diese Tatsache rechtfertigt den Ansatz

$$\langle m_n'^{3/2} N \rangle = N_{eff} \cdot \langle m_n'^{3/2} \rangle.$$

Damit ist eine effektive Multiplizität  $N_{eff}$  definiert, die nicht mehr ganzzahlig zu sein braucht. Im Spezialfall  $E_1 = E_2$  wird

$$N_{eff} = \frac{N_1 m_1'^{3/2} + N_2 m_2'^{3/2}}{\langle m_n'^{3/2} \rangle} \sim N_1 + N_2.$$

Um die Suszeptibilität zu berechnen, müssen wir die Anteile der Teilbänder mitteln und wir erhalten die Beziehung:

$$\left\langle \left( \frac{m}{m_n} \right)^2 \right\rangle = \frac{N_1 m_1'^{3/2} \left( \frac{m}{m_1} \right)^2 e^{-\frac{\Delta E_1}{k T}} + N_2 m_2'^{3/2} \left( \frac{m}{m_2} \right)^2 e^{-\frac{\Delta E_2}{k T}}}{N_1 m_1'^{3/2} e^{-\frac{\Delta E_1}{k T}} + N_2 m_2'^{3/2} e^{-\frac{\Delta E_2}{k T}}}.$$

Auch dieser Mittelwert ist temperaturabhängig, strebt aber, da wiederum gilt  $E_1 \sim E_2$  und zudem  $m_1' \sim m_2'$  ist, mit zunehmender Temperatur einem Grenzwert zu. Durch die oben definierten Mittelungen ist das Dreibandmodell auf das Zweibandmodell zurückgeführt. Wir werden alle Auswertungen der Suszeptibilitätsmessungen nach dem Zweibandmodell durchführen, das heisst, wir gehen aus von der Beziehung

$$\chi_L = \frac{\mu^2}{3 \varrho k T} \langle n_i \rangle \left( 6 - \left\langle \left( \frac{m}{m_n} \right)^2 \right\rangle - \left\langle \left( \frac{m}{m_p} \right)^2 \right\rangle \right).$$

Zur Vereinfachung werden wir allerdings das Mittelungszeichen über die beiden Leitungsbänder weglassen. Alle angeführten Resultate sind aber immer als solche Mittelwerte zu betrachten.

### 3. Messungen

#### a) Messmethode

Unsere Proben waren prismatische Stäbchen von 38 mm Länge und einem quadratischen Querschnitt mit 3,6 mm Seitenlänge. Die Herstellung der Proben, die Bestimmung ihrer Zusammensetzung und die Charakterisierung sind in unserer früheren Arbeit beschrieben<sup>7)</sup>.

Wir haben die Suszeptibilitäten mit der Apparatur von BUSCH und MOOSER<sup>1)</sup> gemessen. Die relative Messgenauigkeit beträgt 0,2% und ist durch die Schwankungen des Nullpunktes der Waage begrenzt. Die Absolutgenauigkeit für beliebige Proben beträgt nur 4%, doch haben wir für die Mischkristallreihe Ge-Si eine Präzision von 1% erreichen können, indem wir die Messwerte der in einem offenen Quarzröhrchen aufgehängten Proben mit denjenigen einer geometrisch identischen Ge-Probe verglichen. Leider kann man nur bis zu Temperaturen von etwa 400°C in einem offenen Quarzröhrchen Suszeptibilitäten messen. Bei höheren Temperaturen verdampft die Probe. Sie muss deshalb in einem abgeschlossenen evakuierten Quarzröhrchen gemessen werden. Durch Vergleich mit der Messung im offenen Röhrchen lässt sich der Beitrag des Quarzes eliminieren.

Die Proben wurden bei steigender und fallender Temperatur gemessen, um Hystereseerscheinungen zu vermeiden. Zudem wurden die Proben auch nach einer Drehung um 180° erneut gemessen, dies, um ihre Homogenität zu überprüfen. Alle diese 4 Messungen ergaben identische Resultate.

#### b) Ergebnisse

Figur 1 und Figur 2 zeigen die Volumensuszeptibilität einiger Proben. Klar ersichtlich ist beim Tieftemperaturast der lineare Abfall des Diamagnetismus und für Ge-reiche Proben beim Hochtemperaturast wieder die Zunahme des diamagnetischen Anteils. Der Hochtemperaturast ist bestimmt durch die Suszeptibilität der Ladungsträger. Deutlich sieht man auch, wie für Proben mit mehr als 50 At% Si der Ladungsträgermagnetismus verschwindend klein wird. Die Volumensuszeptibilität ist beinahe linear mit der physikalisch noch sinnvolleren Suszeptibilität pro g-Atom verknüpft, denn die Dichte der Proben ist eine fast lineare Funktion ihrer Zusammensetzung.

Figur 3 zeigt die Messwerte bei Zimmertemperatur für alle Proben. Wenn man  $\chi/g$  At statt  $\chi/cm^3$  auftragen würde, könnte der Zusammenhang zwischen Suszeptibilität und Si-Konzentration angenähert durch eine Gerade wiedergegeben werden. Die Tatsache, dass die Kurve nicht genau linear ist, überrascht nicht, denn auch makroskopische Größen wie

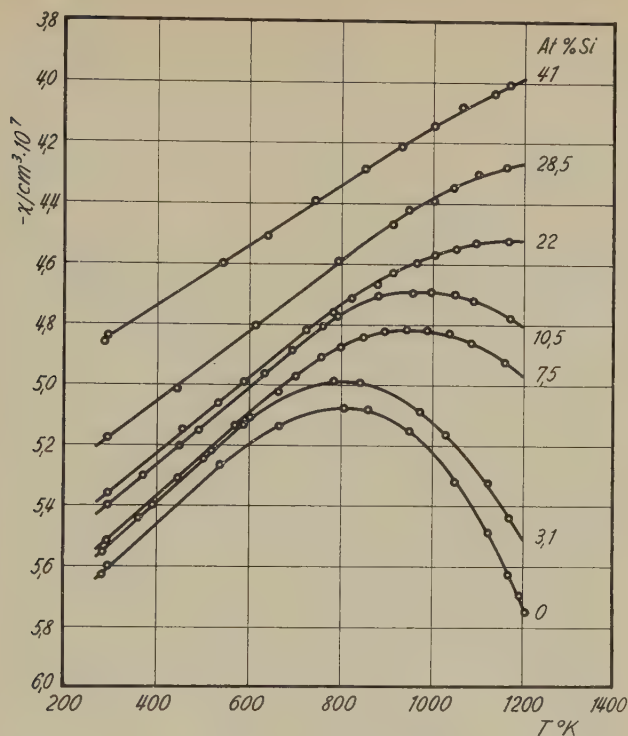


Fig. 1

Volumenssuszeptibilität Ge-reicher Proben

Dichte oder Gitterkonstante sind nur in gröberer Näherung linear von der Konzentration abhängig.

Figur 4 zeigt, dass auch die Steigung des Tieftemperaturastes  $\partial\chi/\partial T$  sich monoton mit der Si-Konzentration ändert. Auch hier würde sich die Kurve noch mehr einer Geraden nähern, wenn wir statt der Volumenssuszeptibilität die Atomsuszeptibilität auftragen würden.

Figur 5 zeigt, wie die Suszeptibilität der Ladungsträger als Differenz der gemessenen Suszeptibilität und einem Gitteranteil  $\chi_G$  erhalten wird. Der Gitteranteil  $\chi_G$  variiert linear in  $T$  mit der gleichen Steigung wie der Tieftemperaturast, ist aber um eine Grösse  $\delta$  gegenüber diesem verschoben. Die Grösse  $\delta$  ist dabei aus der Forderung bestimmt, dass  $n_i$  die Form  $n_i = T^{3/2} e^{-(T)/2kT} \cdot \text{const}$  haben muss. Falls  $T_c$  diejenige Temperatur ist, für welche die Suszeptibilitätskurve von der Geraden abzuweichen beginnt, so ist  $\delta$  konstant für  $T > T_c$  und sollte mit dem Exponentialfaktor  $e^{-(T)/2kT}$  abklingen für  $T < T_c$ . Dabei ist vorausgesetzt, dass der

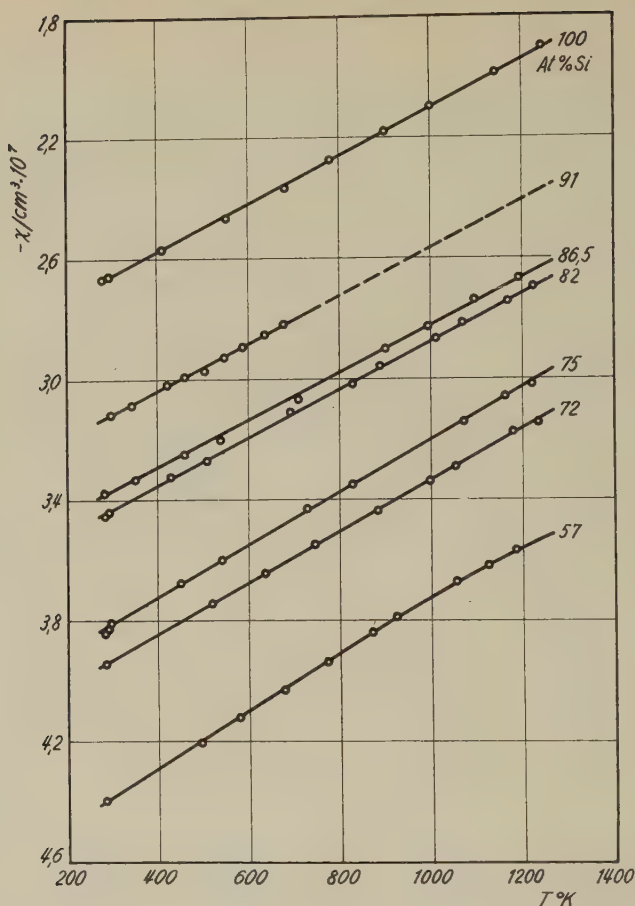


Fig. 2

Volumenssuszeptibilität Si-reicher Proben

Faktor  $(6 - \overline{(m/m_n)^2} - \overline{(m/m_p)^2})$  temperaturunabhängig sei, eine Annahme, die, verglichen mit der Exponentialfunktion, sicher in guter Näherung erfüllt ist.

Für die Richtigkeit unserer Annahme spricht, dass die Grösse  $\Gamma$  innerhalb der Fehlergrenze mit der Breite der verbotenen Zone, wie sie etwa aus optischen oder elektrischen Messungen bestimmt worden ist (vgl. zum Beispiel die Resultate von BRAUNSTEIN, MOORE und HERMAN<sup>10)</sup>), identisch ist. Unsere Messungen sind zu ungenau, um einen systematischen Zusammenhang zwischen  $\delta$  und der Si-Konzentration festzustellen. Die  $\delta$ -Werte sind gewöhnlich von der Grössenordnung  $6 \times 10^{-9}$  cgs.



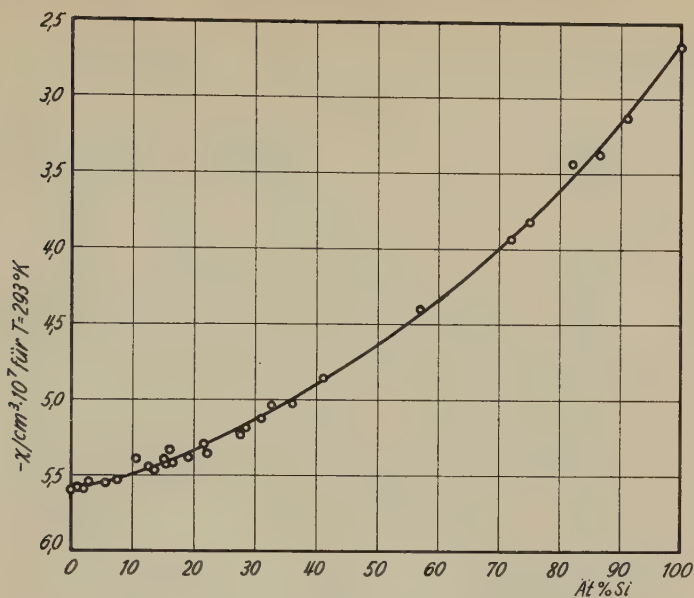


Fig. 3  
 $\chi/\text{cm}^3$  für  $T = 293^\circ \text{K}$

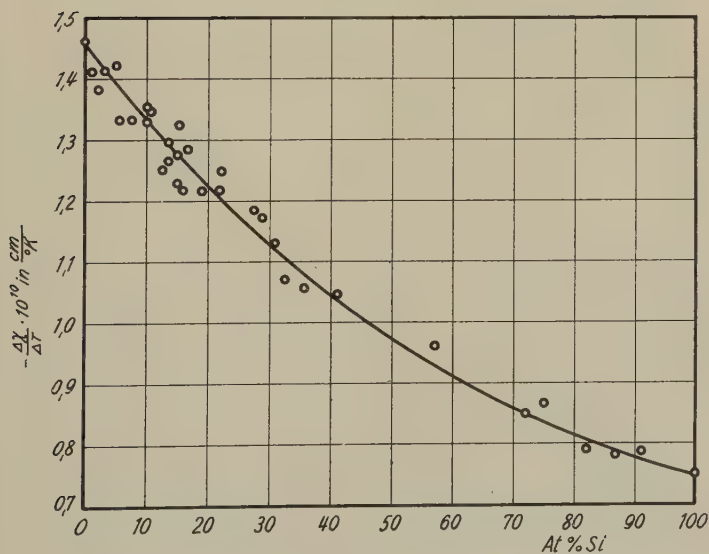


Fig. 4  
 Steigung des Tieftemperaturastes

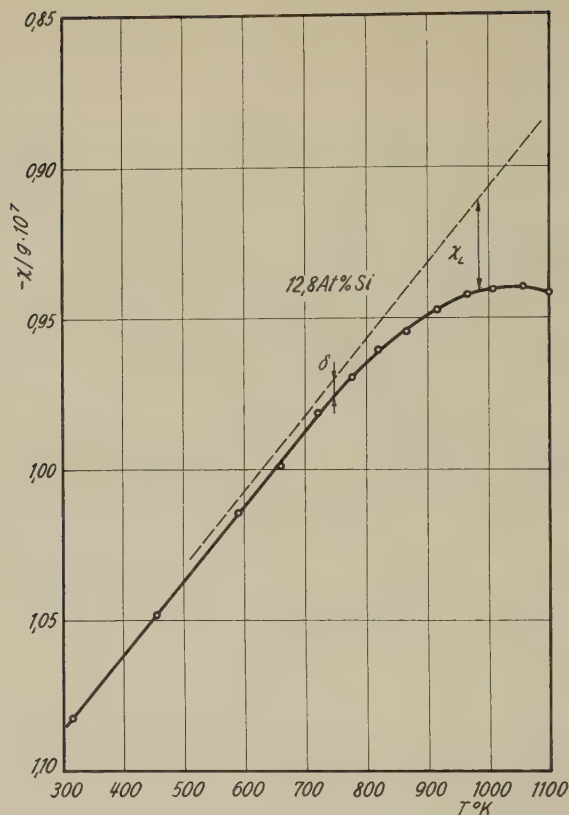


Fig. 5

Bestimmung der Ladungsträgersuszeptibilität

Figur 6 zeigt, dass die Ladungsträgersuszeptibilität, multipliziert mit  $T^{-1/2}$ , tatsächlich dem gleichen Temperaturgesetz gehorcht wie die elektrische Leitfähigkeit.

Die Breiten der verbotenen Zonen sind die gleichen wie die aus den Leitfähigkeiten gemessenen, nur sieht man schon aus der Lage der Messpunkte, dass sie bedeutend weniger genau definiert sind.

In unserer früheren Arbeit<sup>7)</sup> haben wir gezeigt, dass für  $T = 1000^\circ \text{K}$  die Inversionsdichte bis zu einem Gehalt von 50 At% Si fast konzentrationsunabhängig ist. Indem wir den aus elektrischen Messungen bestimmten Wert für  $n_i$  verwenden und aus der Figur 6 den Wert von  $\chi_L$  für  $1000^\circ \text{K}$  ablesen, können wir den Faktor  $(6 - (m/m_n)^2 - (m/m_p)^2)$  als Funktion der Si-Konzentration bestimmen.

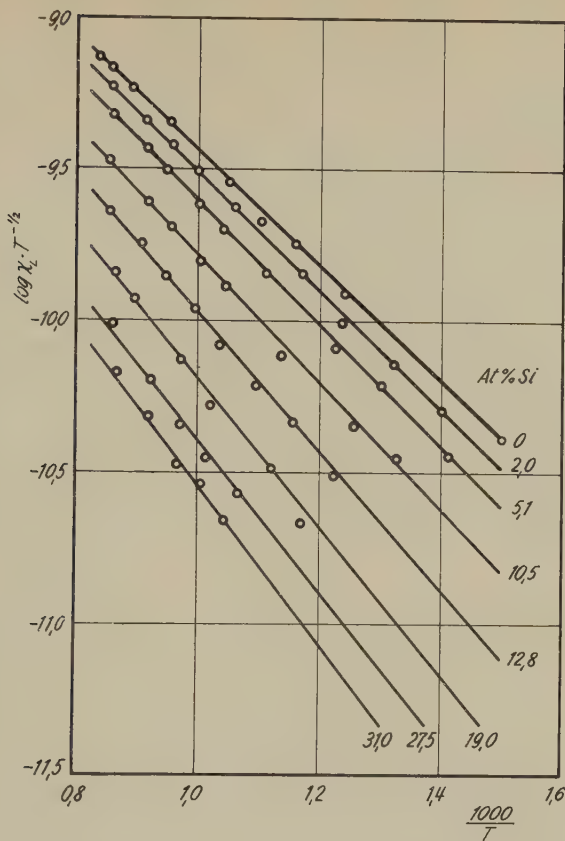


Fig. 6

$\log \chi_L \cdot T^{-1/2}$  als Funktion von  $1000/T$

Figur 7 zeigt den Faktor  $(6 - \overline{(m/m_n)^2} - \overline{(m/m_p)^2})$  im logarithmischen Maßstabe aufgetragen. Der Abfall mit zunehmender Si-Konzentration in der logarithmischen Darstellung ist innerhalb der Fehlergrenze linear.

Die Absolutwerte stimmen nicht genau mit denjenigen überein, die BUSCH, STOCKER und VOGT<sup>11)</sup> früher publiziert haben. Der Unterschied rührt davon her, dass sich die vorliegende Arbeit auf eine direkte Bestimmung der Inversionsdichte an der Probe selbst stützt, während wir vorher aus den Resultaten anderer Autoren die Inversionsdichte approximativ errechnen mussten. Unsere vorliegenden Resultate stimmen aber sehr schön überein mit Messungen der Zyklotronresonanz von DRESSELHAUS, KIP und KITTEL<sup>12)</sup>, denn, wie ENZ<sup>5)</sup> gezeigt hat, kann man obenstehenden Faktor direkt aus den Zyklotronmassen berechnen.

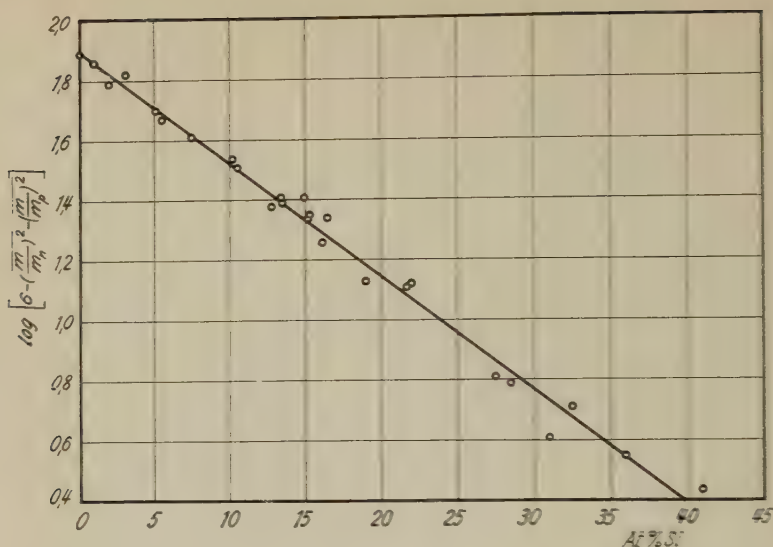


Fig. 7

$\log [6 - (\overline{m/m_n})^2 - (\overline{m/m_p})^2]$  als Funktion der Si-Konzentration

#### 4. Diskussion

##### a) Resultate anderer Autoren

Um  $(\overline{m/m_n})^2$  und  $(\overline{m/m_p})^2$  einzeln bestimmen zu können, brauchen wir noch Messungen anderer Größen. Es ist unser Ziel, mit einem Minimum von solchen Resultaten auszukommen. Die zuerst erwähnten Zyklotronresonanzmessungen sind zur Auswertung von Suszeptibilitätsmessungen zwar nicht unbedingt notwendig, wir führen sie aber für Ge und Si an, weil sie die Präzision der Auswertung wesentlich erhöhen. In der folgenden Tabelle sind die Werte von DRESSELHAUS, KIP und KITTEL<sup>12</sup> aufgeführt.

	$m_1$	$m_t$	$m_-$	$m_+$
Ge	1,58	0,082	0,042	0,34
Si	0,97	0,19	0,16	0,52

Unbedingt notwendig ist hingegen die Kenntnis der Temperaturabhängigkeit der Breite der verbotenen Zone. Wir schreiben sie in der Form  $\Delta E = \Delta E_0 - \beta T$ . Die  $\beta$ -Werte wurden von BRAUNSTEIN, MOORE und HERMAN<sup>10</sup>) mit Hilfe der optischen Absorption gemessen. Ferner muss

die Elliptizität  $\varepsilon$  bekannt sein. Sie wurde von GLICKSMAN<sup>8)</sup> aus der magnetischen Widerstandsänderung bestimmt. Es zeigt sich, dass  $\varepsilon$  zwischen 0 und 10% dem Wert von Ge entspricht, zwischen 25 und 100% demjenigen von Si und im Zwischengebiet, wo beide Bänder wirksam sind, Zwischenwerte annimmt. Für Ge und Si haben wir uns auf die Werte der Zyklotronresonanzmessungen gestützt.

Das Krümmungsverhältnis  $\gamma$  ist leider für die Mischkristallreihe Ge-Si nicht bekannt. WILLARDSON, HARMAN und BEER<sup>13)</sup> haben zwar gezeigt, dass es aus elektrischen Messungen bestimmt werden könnte. Dazu sind aber unsere Messungen nicht umfassend und nicht präzise genug. Da sich die Werte für Ge und Si (aus der Zyklotronresonanz bestimmt) nicht in der Größenordnung unterscheiden, nehmen wir an, dass  $\gamma$  ähnlich wie  $\varepsilon$  von der Si-Konzentration abhängig sei. In der folgenden Tabelle sind die von uns angenommenen Rechengrößen zusammengestellt. Ganz besonders folgt daraus, dass unsere Annahme über  $\gamma$  die Resultate in keiner Weise wesentlich beeinflussen kann, da die Variation des Faktors  $(1 + \gamma^{-1/2}) (1 + \gamma^{3/2})^{1/3}$  unbedeutend ist, verglichen mit der starken Konzentrationsabhängigkeit von  $\chi_L$ .

At % Si	$\varepsilon$	$\gamma$	$\frac{1}{3} (\varepsilon^{2/3} + 2 \varepsilon^{-1/3})$	$(1 + \gamma^{-1/2}) (1 + \gamma^{2/3})^{1/3}$
0	19,3	8,1	2,65	3,90
10	14	6,6	1,95	3,64
20	7	5,2	1,57	3,39
30	4,6	3,7	1,33	3,06
40	4,7	3,25	1,35	2,94
50	4,8	3,25	1,35	2,94
60	4,9	3,25	1,35	2,94
70	5,0	3,25	1,37	2,94
80	5,0	3,25	1,37	2,94
90	5,0	3,25	1,37	2,94
100	5,1	3,25	1,37	2,94

### b) Auswertung nach dem Zweibandmodell

Sobald wir die  $\beta$ -Werte kennen, erhalten wir aus der Formel

$$\frac{m^2}{m_n \cdot m_p} = \left[ 4,82 \cdot 10^{15} \frac{T^{3/2}}{n_i} e^{-\frac{\Delta E_0 - \beta T}{2 k T}} \right]^{4/3}$$

sofort das Produkt der reziproken effektiven Massen, wie es in Figur 8 aufgetragen ist.

Wesentlicher als der Wert von  $m_n$  ist für uns der Wert  $m_n^i$ . Es gilt ja, nach unseren früheren Ausführungen, die Beziehung  $m_n = m_n^i \cdot N_{eff}^{2/3}$ .



Unsere elektrischen Messungen stehen mit der Annahme im Einklang, dass  $N = 4$  ist für Ge und  $N = 6$  für Si. In der Umgebung von 15 At% Si haben beide Teilbänder die gleiche Aktivierungsenergie. Da, wie sich später zeigen wird, die effektiven Massen beider Bänder nahezu gleich gross sind, addieren sich die Multiplizitäten und  $N$  wird gleich 10.

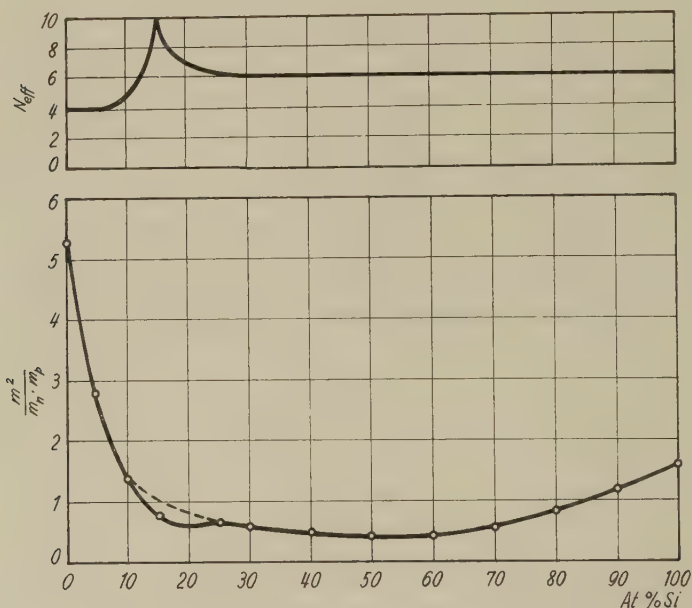


Fig. 8

Produkt der reziproken effektiven Massen

Im Zwischengebiet klingt  $N_{eff}$  exponentiell auf die Werte für Ge bzw. für Si ab, wobei der Abfall nach der Ge-Seite entsprechend der schneller variierenden Breite der verbotenen Zone steiler ist. Ausgehend von den Resultaten von GLICKSMAN<sup>8)</sup> nehmen wir an, dass für 10 bzw. 25 At% Si  $N_{eff}$  die Werte von Ge bzw. Si erreicht hat. Die offensichtliche Abweichung vom glatten Verlauf bei 15 At% Si in der Kurve 8 rührt also vom sprunghaften Ansteigen der Multiplizität her. Ein ganz ähnliches Verhalten fand GLICKSMAN<sup>8)</sup> bei Untersuchungen der Elektronenbeweglichkeit, indem dort das Auftreten zweier isoenergetischer Energiebänder Anlass zu zusätzlicher Streuung gab (interband scattering). Mit dem in Figur 8 angedeuteten Verlauf von  $N_{eff}$  können wir sofort das Produkt der reziproken effektiven Massen in einem einzigen Ellipsoid berechnen. Es ist aufgetragen in Figur 9. Der glatte Verlauf der Kurve in Figur 9 zeigt

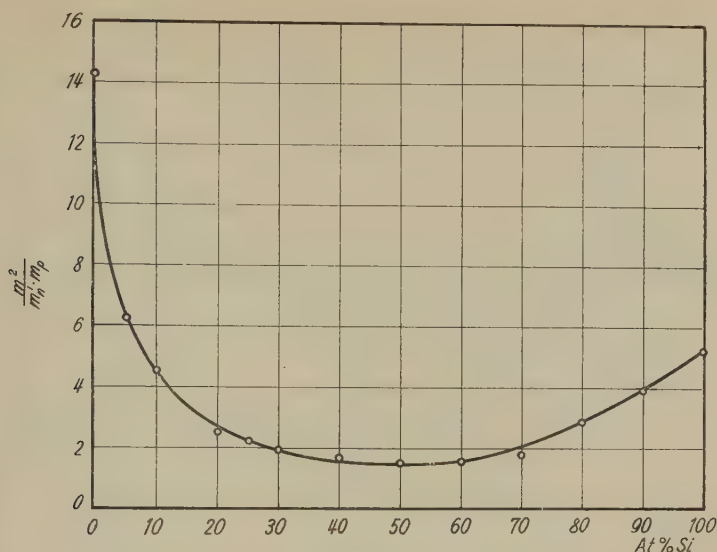


Fig. 9

Das Produkt  $m^2/m'_n \cdot m_p$ 

deutlich, dass unsere, im übrigen nicht einschneidenden Annahmen über  $N_{eff}$  vernünftig waren.

Sobald wir  $m'_n \cdot m_p$  als Funktion der Konzentration kennen, können wir auch  $\overline{(m/m_n)^2} \cdot \overline{(m/m_p)^2}$  berechnen durch Multiplikation mit  $1/3 \epsilon^{2/3} \times (1 + 2/\epsilon^{1/3}) (1 + \gamma^{-1/2}) (1 + \gamma^{3/2})^{1/3}$ . Da wir  $\overline{(m/m_n)^2} + \overline{(m/m_p)^2}$  bis zu einer Konzentration von 50% Si gemessen haben und der Wert sich aus den Grössen der effektiven Massen für Si berechnen lässt, lassen sich  $\overline{(m/m_n)^2}$  und  $\overline{(m/m_p)^2}$  in diesem Konzentrationsgebiet einzeln bestimmen, damit aber auch  $m'_n$  und  $m_p$ . Leider sind die Werte  $\overline{(m/m_n)^2} + \overline{(m/m_p)^2}$  für Konzentrationen über 50 At% Si aus Suszeptibilitätsmessungen nicht zu errechnen. Um interpolieren zu können, bilden wir auf rein heuristischer Grundlage das Verhältnis

$$\frac{m^{5/2}}{\overline{b_p} \cdot m_p^{5/2}}.$$

Die Kurve zeigt, dass in der logarithmischen Darstellung eine lineare Interpolation möglich und vernünftig ist. Damit kennen wir aber die Werte für  $m_p$  und können daraus  $m'_n$  und  $\overline{(m/m_n)^2}$  und  $\overline{(m/m_p)^2}$  einzeln für sämtliche Konzentrationen berechnen. Die Werte sind aufgetragen in den Figuren 11, 12 und 13.

Nun ist es uns auch möglich,  $\chi_L$  bei beliebiger Temperatur für sämtliche Konzentrationen zu berechnen. Wir kennen nämlich die Inversionsdichte

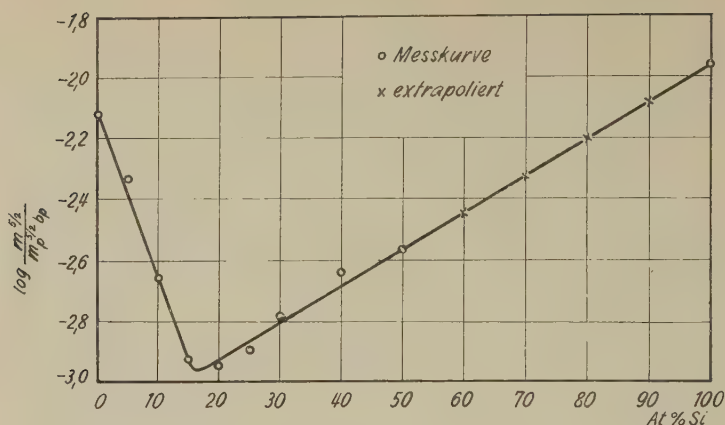


Fig. 10

$\log m_p^{5/2}/b_p \cdot m_b^{5/2}$  als Funktion der Si-Konzentration

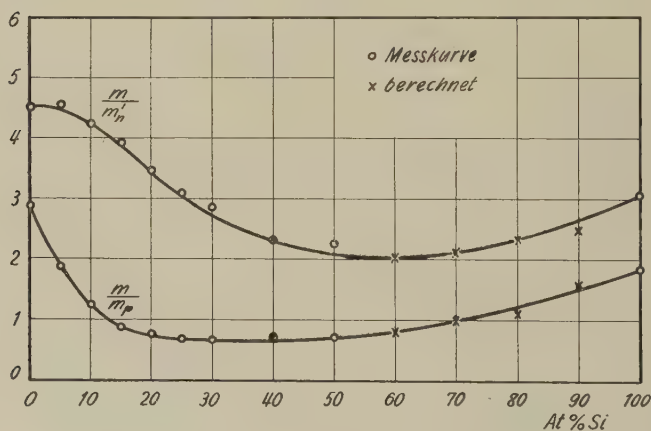


Fig. 11

Effektive Massen von Löchern und Elektronen

$n_i$  aus elektrischen Messungen, und den Faktor  $(6 - (m/m_n)^2 - (m/m_p)^2)$  haben wir für Ge-reiche Proben gemessen, für Si aus Zyklotronresonanzmessungen berechnet und im Zwischengebiet in der oben angegebenen Weise interpoliert.

Die Isothermen in Figur 14 lassen nicht ohne weiteres erkennen, weshalb man bei Si keine Ladungsträgersuszeptibilität beobachten kann. Die berechnete Ladungsträgersuszeptibilität ist nämlich bei 1200° K etwa

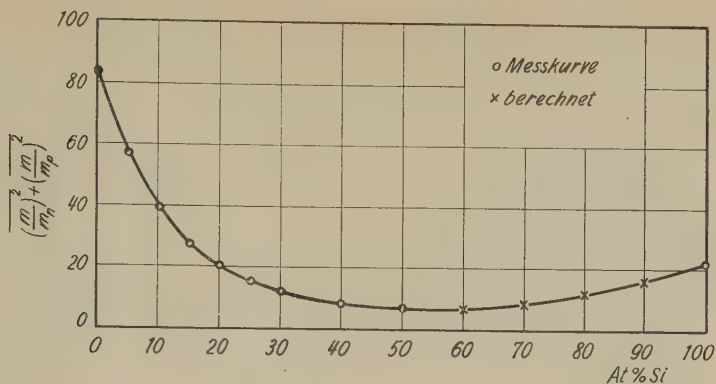


Fig. 12

Summe der effektiven Massen

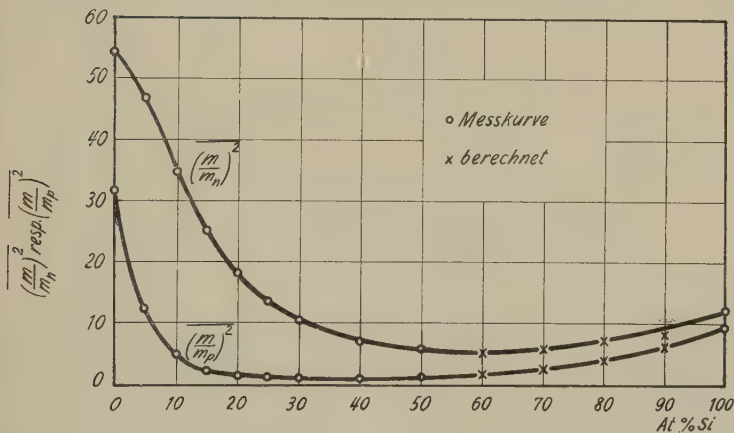


Fig. 13

 $\left(\frac{m}{m_h}\right)^2, \quad \left(\frac{m}{m_p}\right)^2$  einzeln

dreimal grösser als die Messgenauigkeit. Wir können dieses Verhalten vorläufig nur dahin interpretieren, dass der oben definierte  $\delta$ -Wert für Si-reiche Proben grösser wird als etwa für Ge.

### c) Deformationspotential

Der Verlauf der Kurve von Figur 10 lässt uns vermuten, dass es sinnvoll ist, Deformationspotentiale zu betrachten. SHOCKLEY<sup>14)</sup> hat folgende Beziehung für die Beweglichkeiten hergeleitet:

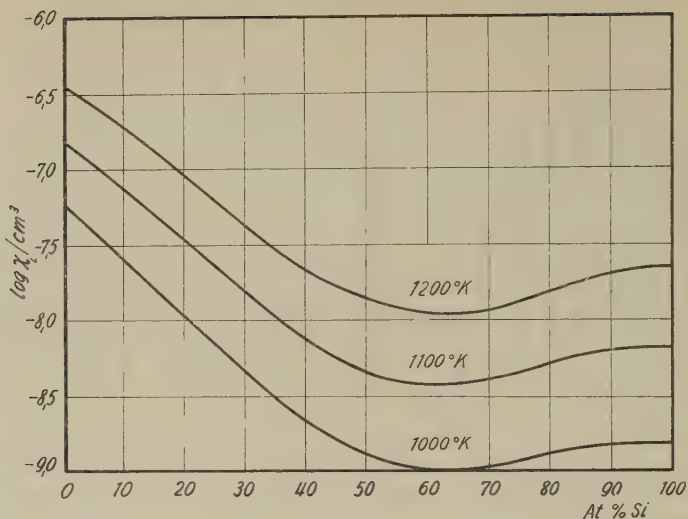


Fig. 14

Isothermen von  $\log \chi_L/\text{cm}^3$ 

$$b_{n,p} = \frac{2\sqrt{2\pi}}{3} \cdot \frac{h^2 c_{ll} \cdot T^{-3/2}}{(2\pi)^4 E_{1n,p}^2 \cdot m_{n,p}^{5/2} \cdot \hbar^{3/2}}.$$

 $c_{ll}$  = Elastizitätskonstante für akustische Wellen $E_{1n,p}$  = Deformationspotentiale

Wir wollen für unsere Mischkristalle die Grössen  $E_{1n}$  und  $E_{1p}$  berechnen. Dazu nehmen wir an, dass der Wert von  $c_{ll}$  linear vom Wert für Ge ( $1,55 \cdot 10^{12}$  dyn/cm<sup>3</sup>) zum Wert von Si ( $2,0 \cdot 10^{12}$  dyn/cm<sup>3</sup>) ansteigt. Diese Annahme ist wegen der geringen Variation der Schallgeschwindigkeit erlaubt. Schwieriger ist es, die genaue Bedeutung der auftretenden effektiven Massen anzugeben. Bei der Herleitung der Deformationspotentialformel treten effektive Massen auf in der Energie-Impulsbeziehung:

$$\delta E_{v,c} = p \, d p \, \frac{1}{m_{p,n}}.$$

In unserem Modell müssen wir die Energieänderung multipliziert mit der Zustandsdichte über die  $N$  Ellipsoide im Leitungsband bzw. über die zwei Kugelflächen im Valenzband mitteln. Diese Mittelung ist aber identisch mit derjenigen von ENZ<sup>5)</sup>, das heisst, wir können sofort angeben:

$$m_n = (m_i^2 \cdot m_l)^{1/3} \cdot N^{2/3} = m'_n \cdot N^{2/3} \quad m_p = (m_+^{3/2} + m_-^{3/2})^{2/3}.$$



Weil die Multiplizität  $N$  in die Formel von SHOCKLEY eingeht, beschreibt diese a priori auch die von GLICKSMAN 8) diskutierte Zwischenbandstreuung (interband scattering).

Wir benützen nun die Beweglichkeiten, wie wir sie in unserer früheren Arbeit<sup>7)</sup> bestimmt haben, und können, da wir auch die mittleren effektiven Massen kennen, für alle Konzentrationen  $E_{1n}$  und  $E_{1p}$  berechnen. Die Werte sind aufgetragen in Figur 15. Der Vorzeichenwechsel von  $E_{1n}$  folgt dabei nicht direkt aus der Formel, sondern erst durch Vergleich mit dem Experiment. Jede andere der vier möglichen Arten, das Vorzeichen festzulegen, würde grössenordnungsmässig falsche Resultate für die Konzentrationsabhängigkeit der Breite der verbotenen Zone liefern.

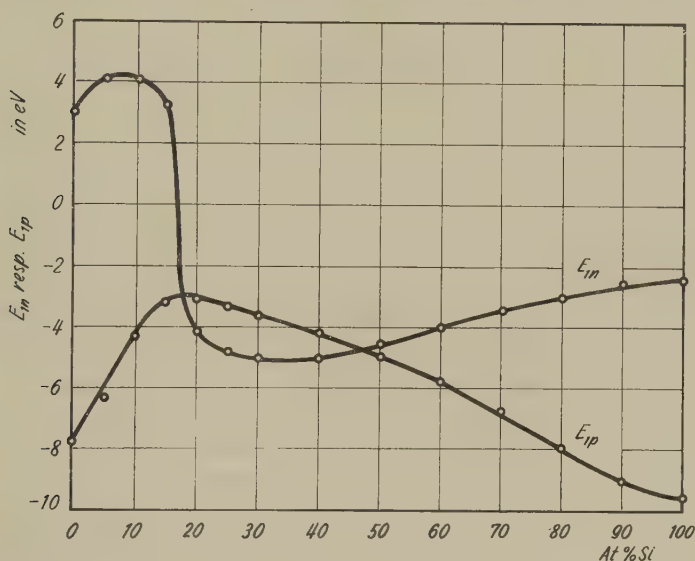


Fig. 15  
Deformationspotentiale

Die Bandränder  $E_{0p}$  und  $E_{0n}$  verlagern sich gemäss der Beziehung

$$(\delta E_{0n,p})^2 = - (E_{1n,p})^2 \left( \frac{\delta V}{V_0} \right)^2$$

$V_0$  ist das Volumen des Grundgebietes. Wenn wir die Gitterkonstante  $a_0$  einführen, gilt

$$\frac{\delta V}{V_0} = 3 \frac{\delta a_0}{a_0}$$

Da  $a_0$  für unsere Mischkristalle nahezu eine lineare Funktion der Si-Konzentration  $x$  ist, kann man

$$\frac{\delta a_0}{a_0} = \text{const } \delta x$$

schreiben, und wir erhalten somit

$$\delta E_{0n,p} = \pm E_{1n,p} \cdot K \cdot \delta x,$$

dabei ist

$$K = \frac{3}{a_0} \frac{da_0}{dx}.$$

Man erhält auf diese Weise  $K = 1,22 \cdot 10^{-3}/\text{At}\% \text{ Si}$ . Durch graphische Integration von  $E_{1n,p}$  über  $x$  ergibt sich der Verlauf der Bandränder als Funktion der Konzentration. Das so entstehende Bandschema ist in Figur 16 dargestellt.

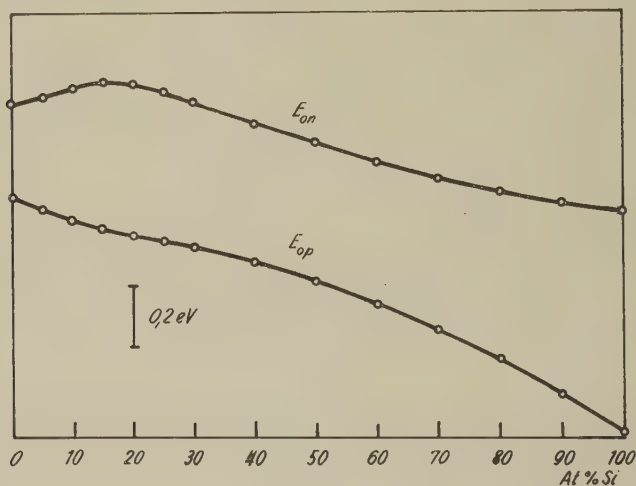


Fig. 16

Bandschema für Mischkristalle

Experimentell bestimmt sich  $K$  aus der Bedingung

$$\int_0^{100} K (E_{1n} - E_{1p}) dx = \Delta E_{Si} - \Delta E_{Ge} = 0,42 \text{ eV}.$$

Wir erhalten  $K = 1,34 \cdot 10^{-3}/\text{At}\% \text{ Si}$  in sehr guter Übereinstimmung mit dem theoretischen Wert angesichts des recht einfachen Modelles, das der Deformationpotentialformel zu Grunde liegt.

Wir sehen auch, dass die Breite der verbotenen Zone die gleiche Konzentrationsabhängigkeit zeigt, wie sie etwa BRAUNSTEIN, MOORE und HERMAN<sup>10)</sup> gemessen haben.

Die Vermutung von HERMAN<sup>15)</sup>, die besagt, dass das (111)-Band und das (100)-Band bei zunehmender Si-Konzentration mit verschiedener «Geschwindigkeit» sich vom Valenzband entfernen, muss präzisiert werden. Die Bänder nähern sich, vom energetischen Nullpunkt aus gesehen, dem Wert bei 15 At % Si mit fast gleicher «Absolutgeschwindigkeit» (die proportional dem Wert  $E_{1n}$  ist), aber die «Geschwindigkeiten» haben entgegengesetztes Vorzeichen, das heisst, das (111)-Band steigt und das (100)-Band fällt mit zunehmender Si-Konzentration. Über ein ziemlich grosses Konzentrationsgebiet haben wir die Beziehung  $|E_{1p}| < |E_{1n}|$  gemessen, das heisst, die Breite der verbotenen Zone müsste mit zunehmender Si-Konzentration abnehmen. Ein solches Verhalten haben wir in unserer früheren Arbeit<sup>7)</sup> bei der Bestimmung der Breite der verbotenen Zone aus Leitfähigkeitsmessung auch tatsächlich festgestellt. Wir haben dort auch ausgeführt, dass dieses Verhalten kaum der physikalischen Realität entspricht, sondern auf zu groben Voraussetzungen über die Temperaturabhängigkeit der verbotenen Zone beruht.

Falls man, wie dies GLICKSMAN<sup>8)</sup> implizite getan hat, die Verlagerung des Leitungsbandes mit dem Verlauf der Breite der verbotenen Zone identifiziert, ist es schwierig zu verstehen, weshalb über einen Bereich von 15 At % Si beide Leitungsbänder wirksam sein sollen. Unser Resultat zeigt jedoch, dass sich das Leitungsband nur ungefähr halb so stark wie die Breite der verbotenen Zone mit zunehmender Konzentration verschiebt. Entsprechend wird natürlich auch der energetische Abstand der zwei Leitungsbänder weniger von der Konzentration abhängen. Dies erklärt dann sofort, weshalb GLICKSMAN schon bei Zimmertemperatur von 10 bis 25 At % Si die Wirksamkeit beider Bänder nachweisen konnte.

## 5. Schluss

Es ist uns gelungen, auf Grund unserer Messungen mit dem Modell von ENZ<sup>5)</sup> die Suszeptibilität im Gebiet der Eigenleitung von Ge-Si-Mischkristallen zu verstehen und auszuwerten. Die Auswertung ist dabei überraschend erfolgreich, indem zum Beispiel auch Freiheitszahlen einzeln bestimmt werden können. Den Tieftemperaturast der Suszeptibilität können wir nach wie vor noch nicht befriedigend interpretieren. Dazu wird zuerst eine vollständige Theorie der Gittersuszeptibilität notwendig sein.

Dem Verein zur Förderung der Festkörperphysik an der ETH sind wir für die finanzielle Unterstützung dieser Arbeit sehr zu Dank verpflichtet.

Herrn SI YUAN verdanken wir die Durchführung der magnetischen Messungen und viele wertvolle Anregungen beim Abfassen dieser Arbeit.

**Literaturverzeichnis**

- <sup>1)</sup> G. BUSCH und E. MOOSER, *Helv. Phys. Acta* **26**, 611 (1953).
- <sup>2)</sup> G. BUSCH, *Halbleiter und Phosphore*, S. 158 (1958).
- <sup>3)</sup> G. BUSCH, N. HELFER, *Helv. Phys. Acta* **27**, 201 (1954).
- <sup>4)</sup> D. K. STEVENS, J. H. CRAWFORD, *Phys. Rev.* **92**, 1065 (1953); **94**, 1415 (1954).
- <sup>5)</sup> CH. ENZ, *Helv. Phys. Acta* **28**, 158 (1955).
- <sup>6)</sup> J. A. KRUMHANSEL und H. BROOKS, *Bull. Am. Phys. Soc.* **II** 1/3, F 5 (1956).
- <sup>7)</sup> G. BUSCH und O. VOGT, *Helv. Phys. Acta*, **33**, 437 (1960).
- <sup>8)</sup> M. GLICKSMAN, *Phys. Rev.* **102**, 1496 (1956), **104**, 1278 (1956).
- <sup>9)</sup> O. MADELUNG, *Handbuch der Physik* **20**, 234 (1957).
- <sup>10)</sup> R. BRAUNSTEIN, A. R. MOORE und F. HERMAN, *Phys. Rev.* **109**, 695 (1958).
- <sup>11)</sup> G. BUSCH, H. J. STOCKER und O. VOGT, *Helv. Phys. Acta* **31**, 565 (1958).
- <sup>12)</sup> C. DRESSELHAUS, A. F. KIP und C. KITTEL, *Phys. Rev.* **100**, 1218 (1955).
- <sup>13)</sup> R. K. WILLARDSON, T. C. HARMAN und A. C. BEER, *Phys. Rev.* **96**, 1512 (1954).
- <sup>14)</sup> W. SHOCKLEY, *Electrons and Holes in Semiconductors* (D. Van Nostrand Company, New York, 1950).

# Bestimmung von Elektronen-Wanderungsgeschwindigkeiten in Gasmischungen

von A. Comunetti und P. Huber

Physikalische Anstalt der Universität Basel

*Zusammenfassung.* Die vorliegende Arbeit beschreibt eine Methode, die sich zur präzisen Messung der Wanderungsgeschwindigkeiten von Elektronen in einigen Gasen von praktischer Bedeutung eignet. Die Messmethode gestattet gleichzeitig auch die Ermittlung der Diffusionskonstante und daraus die Berechnung der  $\varepsilon$ -Zahlen, d. h. der auf die Gastemperatur bezogenen kinetischen Elektronentemperatur.

Mitgeteilt werden die Wanderungsgeschwindigkeiten von Elektronen in Stickstoff und den Gasmischungen A-N<sub>2</sub> und A-CO<sub>2</sub> in Abhängigkeit der durch den Gasdruck dividierten elektrischen Feldstärke im Bereich von 0,1 bis 1 Volt/cm · Torr.

## 1. Einleitung

Bei Verwendung der Ionisationskammer als Messinstrument ist die Kenntnis der Wanderungsgeschwindigkeit der Elektronen oder Ionen als Funktion von Feldstärke und Druck bedeutungsvoll.

In den vergangenen Jahren wurden wiederholt Anstrengungen unternommen, über die verschiedenen, sich zum Teil widersprechenden Messergebnisse bezüglich des Verhaltens von Elektronen in Gasen Klarheit zu verschaffen. Zu diesem Zwecke, wie auch aus praktischen Bedürfnissen, wurden neben den «klassischen» Methoden TOWNSENDS<sup>1)</sup> und NIELSENS<sup>2)</sup> weitere Verfahren entwickelt. Es handelt sich dabei vorwiegend um die Ausmessung der Form von Ionisationskammerimpulsen oder um direkte Laufzeitmessungen wie beim Verfahren von STEVENSON<sup>3)</sup>, das ausgebaut wurde von BORTNER, HURST und STONE<sup>4)</sup>. Zu diesem Verfahren gehört auch das vorliegende, das man kurz als «Start-Stopp-Methode» bezeichnen kann.

## 2. Theoretischer Teil

Eine Gasmenge der Temperatur  $T$  und des Druckes  $p$  befinde sich im homogenen Feld  $E_z$  eines Plattenkondensators (Fig. 1). Zur Zeit  $t = 0$  wird in der  $x$ -Richtung, senkrecht zu  $y$  und  $z$ , ein  $\alpha$ -Teilchen in das Gas geschossen. Längs der  $\alpha$ -Spur entstehen Ionen und Elektronen. Da nur rund die Hälfte der Reichweite des  $\alpha$ -Teilchens aus dem ersten Teilstück der Spur zur Ionisation ausgenützt wird, kann die spezifische Ionisierung



längs  $x$  als konstant angesehen werden. Zur Zeit  $t = 0$  sollen am Ort  $y = z = 0$  je Einheit Weglänge der Spur  $N$  Elektronen entstehen. Die geladenen Teilchen wandern in der  $z$ -Richtung und diffundieren zusätzlich im Verlaufe der Zeit auseinander. Es wird später gezeigt, dass unter

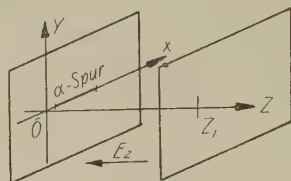


Fig. 1

Festlegung der Koordinaten im Plattenkondensator

den vorliegenden Versuchsbedingungen für die Elektronenwolke zylindersymmetrische Gestalt angenommen werden darf. Für diese wandernden und diffundierenden Teilchen gilt die Differentialgleichung<sup>5)</sup>:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = D \operatorname{div} \operatorname{grad} n - \operatorname{div} (nw) \quad (1)$$

Dabei bedeuten:  $n$  die räumliche Teilchendichte an der Stelle  $(y, z)$  zur Zeit  $t$ .  
 $w$  die Wanderungsgeschwindigkeit des Ladungsschwerpunktes.  
 $D$  die Diffusionskonstante.

Bei zylindersymmetrischer Gestalt der Teilchenwolke lautet die Lösung der Gleichung (1) unter den vorliegenden Grenzbedingungen

$$n(y, z, t) = \frac{N}{4\pi Dt} e^{-\frac{y^2 + (z-wt)^2}{4Dt}} \quad (2)$$

wenn  $N$  die Gesamtzahl der Elektronen je Spurlängeneinheit und  $t$  die Wanderungszeit bedeuten.

Im vorliegenden Falle interessiert der zeitliche Verlauf des Teilchenstromes  $\Phi$  durch die  $x$ - $y$ -Ebene an einer gegebenen Stelle  $z = z_1$ . Dieser Teilchenstrom ist das Produkt aus der Teilchenzahl  $n'(z_1, t)$ , die sich zur Zeit  $t$  an der Stelle  $z_1$  im Volumelement der Abmessungen  $\Delta x = 1$ ,  $\Delta z = 1$  und  $\Delta y$  von  $-\infty$  bis  $+\infty$  befindet, der Wanderungsgeschwindigkeit  $w$  und der Spurlänge  $l_x$ :

$$\Phi = n'(z_1, t) \cdot l_x \cdot w = l_x \cdot w \int_{-\infty}^{+\infty} n(y, z_1, t) dy \quad (3)$$

$$\Phi = l_x \cdot w \frac{N}{\sqrt{4\pi Dt}} e^{-\frac{(z_1-wt)^2}{4Dt}} \quad (4)$$

Es ist für das Folgende bequemer, mit dem reduzierten Teilchenstrom

$$\Phi' \equiv \frac{\Phi}{l_x w} \tag{5}$$

zu rechnen.

Figur 2 stellt den zeitlichen Verlauf der Funktion  $\Phi'$  dar. Die Kurve ist unsymmetrisch bezüglich des Maximums, da die Elektronenwolke während des Durchtritts durch die  $z_1$ -Ebene in Ausdehnung begriffen ist.

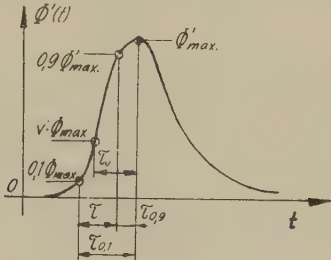


Fig. 2

Zeitlicher Verlauf des Elektronenstromes durch eine zur  $z$ -Richtung senkrechten Ebene

Eine anschaulichere Darstellung dieser Asymmetrie des Teilchenstromes lässt sich durch die Einführung der sogenannten Diffusionslänge  $l(t)$  gewinnen; sie ist definiert als der quadratisch gemittelte Abstand aller Elektronen von irgendeiner durch die Symmetrieachse der Ladungswolke gehenden Ebene. Die Rechnung gibt:

$$l^2(t) = 2 Dt \tag{6}$$

Figur 3 stellt in einigen Momentaufnahmen Ort und Grösse der Ladungswolke dar, die sich mit der Geschwindigkeit  $w$  in Richtung der positiven  $z$ -Achse bewegt. Es ist ersichtlich, dass die Asymmetrie mit wachsender Zeit abnimmt. Meistens ist diese Asymmetrie so gering, dass sie nicht beachtet werden muss. Die Grösse des dadurch entstehenden Fehlers wird unten abgeschätzt.

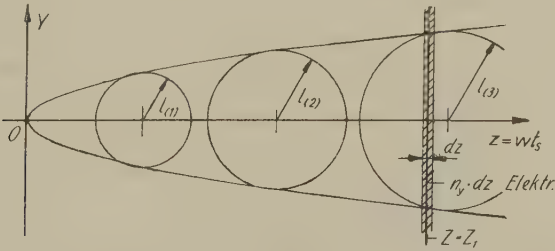


Fig. 3

Momentaufnahmen der wandernden und sich ausdehnenden Elektronenwolke

Eine für die Messungen praktische bzw. notwendige Grösse ist die Anstiegszeit  $\tau$  der Funktion  $\Phi'$ . Sie ist, wie aus Figur 2 ersichtlich, definiert als die Zeit, die verstreicht, bis die Funktion  $\Phi'$  von 10% auf 90% ihres maximalen Wertes ansteigt. Für die Berechnung von  $\tau$  betrachten wir vorerst den Fall, dass die Diffusion «eingefroren» sein soll.  $\Phi'$  ist dann symmetrisch bezüglich  $t_m$ , dem Zeitpunkt, in dem  $\Phi' = \Phi'(t_m)$  ist. Für die Diffusionslänge sei der Wert  $l_m = \sqrt{2 D t_m}$  gewählt. Dann ist:

$$\Phi'(t_m) = \frac{N}{\sqrt{4 \pi D t_m}} \quad (7)$$

Wir bezeichnen allgemein den Quotienten  $\Phi'(t)/\Phi'(t_m)$  mit  $\nu$  und heissen  $t_\nu$  jenen Zeitpunkt vor  $t_m$ , in dem die Funktion  $\Phi'$  den Wert  $\nu \cdot \Phi'(t_m)$  erreicht, also

$$\nu \cdot \Phi'(t_m) = \Phi'(t_m) e^{-\frac{[z_1 - w t_\nu]^2}{4 D t_m}} \quad (8)$$

Definiert man noch

$$\tau_\nu \equiv t_m - t_\nu \quad (9)$$

so wird infolge  $z_1 - w t_m = 0$ :

$$\nu = e^{-\frac{(w \tau_\nu)^2}{4 D t_m}} \quad (10)$$

Setzt man schliesslich für  $\nu$  die Zahlenwerte 0,1 bzw. 0,9 ein, so folgt für die gesuchte Anstiegszeit:

$$\tau = \tau_{0,1} - \tau_{0,9} = \frac{2}{w} \sqrt{D t_m} \cdot (1,52 - 0,32) = \frac{2,4}{w} \sqrt{D t_m} \quad (11)$$

Mit der messbaren Grösse  $\tau$  findet man aus (11) bei gleichzeitig bekanntem  $w$  die Diffusionskonstante  $D$  zu

$$D = \left(\frac{\tau w}{2,4}\right)^2 \frac{1}{t_m} = \frac{1}{5,8} \left(\frac{\tau}{t_m}\right)^2 z_1 w \quad (12)$$

Die eben ausgeführten Rechnungen basieren auf der Annahme zylindersymmetrischer Gestalt der Ladungswolke. Diese Annahme ist dann gerechtfertigt, wenn die Diffusionslänge  $l(t)$  klein ist gegenüber der Länge  $s$  der startenden Elektronenwolke. Mit den Gleichungen (6) und (12) findet man:

$$l^2(t) = \frac{2}{5,8} \left(\frac{\tau}{t_m}\right)^2 z_1^2 = \frac{1}{2,9} \tau^2 w^2 \quad (13)$$

In den vorliegenden Experimenten erreichte der Quotient  $\tau/t_m$  höchstens den Wert 0,05. Bei einem Elektronenlaufweg von  $z_1 = 5$  cm wird  $l \approx 0,15$  cm; die Länge  $s$  beträgt jedoch 1,3 cm.

Es werde noch der Fehler abgeschätzt, der durch die Annahme der eingefrorenen Diffusion während des Durchtritts der Ladungswolke durch die  $z$ -Ebene entsteht.

Entsprechend der Definition der Wanderungsgeschwindigkeit als der Geschwindigkeit des Ladungsschwerpunktes,

$$w \equiv \frac{\int_A n(x, y, z) v dA}{\int_A n(x, y, z) dA} \quad (14)$$

(Die Integration erstreckt sich über einen alle Elektronen enthaltenden Raum  $A$ ;  $v$  bedeutet die Transportgeschwindigkeit der Elektronen)

muss jetzt unterschieden werden zwischen:

$t_m$  = Zeitpunkt der grössten Elektronendichte in der  $z$ -Ebene.

$t_s$  = Zeitpunkt des Durchtritts des Ladungsschwerpunktes durch die  $z$ -Ebene.

In Figur 4 ist somit die Lage von  $t_s$  gegeben durch die Flächengleichheit der beiden schraffierten Gebiete.

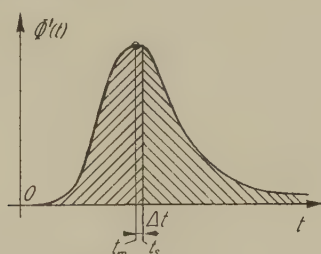


Fig. 4

Zeitliches Nacheilen des Ladungsschwerpunktes gegenüber dem Maximum des Elektronenstromes

Zur Berechnung von  $t_m$  differenzieren wir die Funktion  $\Phi'$  nach  $t$ :

$$\frac{\partial \Phi'(t)}{\partial t} = \frac{N}{\sqrt{4\pi D}} \cdot \frac{z_1^2 - w^2 t^2 - 2 D t}{4 D t^{5/2}} e^{-\frac{(z_1 - w t)^2}{4 D t}} \quad (15)$$

Für  $z_1^2 - (w t_m)^2 - 2 D t_m = 0$  ist  $\partial \Phi' / \partial t = 0$ , woraus

$$t_m = -\frac{D}{w^2} + \sqrt{\left(\frac{D}{w^2}\right)^2 + \left(\frac{z_1}{w}\right)^2} \quad (16)$$

folgt. Unter der Wurzel kann  $(D/w^2)^2$  als kleine Grösse zweiter Ordnung vernachlässigt werden;  $z_1/w$  ist die Wanderungszeit  $t_s$  des Ladungsschwerpunktes. Es gilt somit der Zusammenhang:

$$t_m + \frac{D}{w^2} = t_s \quad (17)$$

Der Durchtritt des Ladungsschwerpunktes durch die  $z$ -Ebene erfolgt um das Zeitintervall

$$t_s - t_m \equiv \Delta t = \frac{D}{w^2} \quad (18)$$

später als das Ladungsmaximum der Elektronenwolke.

Unter Benützung von Gleichung (12) sowie  $z_1/w = t_s$  liefert der Vergleich zwischen  $\Delta t$  und  $t_s$ :

$$\frac{\Delta t}{t_s} = \frac{1}{5,8} \left( \frac{\tau}{t_m} \right) \quad (19)$$

In den vorliegenden Experimenten erreicht  $\tau/t_m$  höchstens den Wert 0,05; der Quotient (19) ist demnach kleiner als  $10^{-2}$ .

### 2.1 Die kinetische Elektronentemperatur

Man versteht unter der relativen Elektronentemperatur  $\varepsilon$  den Quotienten

$$\varepsilon \equiv \frac{1/2 m_e u_m^2}{1/2 m_e u_0^2} \quad (20)$$

Dabei bedeuten:  $m_e$  die Elektronenmasse.

$u_m$  die mittlere statistische Elektronengeschwindigkeit mit elektrischem Feld  $E$ .

$u_0$  die mittlere statistische Elektronengeschwindigkeit ohne elektrisches Feld bei der Gastemperatur  $T$ .

Für den Nenner setzt man meist  $3/2 k T$ . Den Zähler kann man folgendermaßen umformen:

Eine einfache Betrachtung der Impulsbilanz<sup>5)</sup> der im elektrischen Feld wandernden Elektronen führt für die Wanderungsgeschwindigkeit zum Ausdruck:

$$w = \frac{e}{m_e} \frac{\lambda}{u_m} \frac{E}{p} \quad (21)$$

mit  $\lambda$  als der mittleren freien Elektronenweglänge beim Einheitsdruck. Diese Gleichung wird als Bestimmungsgleichung für  $\lambda$  aufgefasst. Weiterhin gilt zwischen der Diffusionskonstanten  $D$  und der freien Weglänge  $\lambda$  der Zusammenhang:

$$D = \frac{\lambda u}{3 p} \quad (22)$$

$\lambda$  aus der vorstehenden Gleichung (21) in Gleichung (22) eingesetzt, ergibt zusammen mit dem nur unter den vorliegenden Versuchsbedingungen gültigen Ausdruck (12)

$$\varepsilon = 7,0 \left( \frac{\tau}{t_m} \right)^2 U \quad (23)$$

mit  $U = z_1 E$ . Diese Gleichung versagt offensichtlich, sobald  $U$  eine gewisse untere Grenze unterschreitet.



## Messapparatur

### 3.1 Messverfahren

Senkrecht zum homogenen elektrischen Feld wird ein  $\alpha$ -Teilchen in das Gas geschossen, das einerseits das Gas ionisiert und dadurch die Ausgangselektronen erzeugt, andererseits durch den Aufprall auf einen Szintillator einen Startblitz hervorruft, der die Zeitmarke  $t = 0$  liefert. Der Elektronenschlauch durchwandert den Messraum der Feldrichtung entgegen, an dessen Ende im «Stoppraum» durch Gasszintillation Stopplicht erzeugt wird, das die Zeitmarke  $t_z$  liefert. Aus der Länge des Laufweges und der Wanderungszeit  $t_z$  lässt sich die Wanderungsgeschwindigkeit berechnen.

### 3.2 Prinzip der Anordnung

Figur 5 zeigt in halbschematischer Darstellung die Ionisationskammer nebst einem Blockschaltbild der Elektronik.

Die von der Po-Quelle (2) emittierten  $\alpha$ -Teilchen laufen infolge starker Kollimation praktisch parallel zur Hochspannungselektrode (1) und treffen, nachdem sie 1/2 bis 2/3 ihrer Energie an das Gas abgegeben haben, auf den organischen Szintillator (3), wo sie Startblitze erzeugen.

Der um die  $\alpha$ -Spur entstehende Elektronenschlauch wandert auf

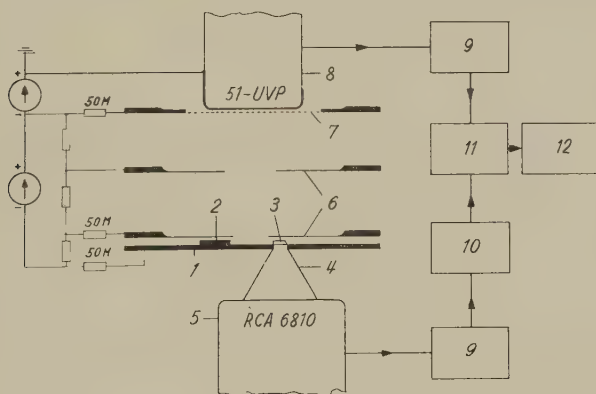


Fig. 5

Schematische Darstellung der Ionisationskammer

1 Hochspannungselektrode; 2 kollimierte  $\alpha$ -Quelle; 3 Szintillator für Startimpulse; 4 Lichtleiter; 5 Fotovervielfacher; 6 Schutzringelektroden; 7 feinmaschige Gitterelektrode als Abschluss des Messraumes; 8 Fotovervielfacher mit transparenter äusserer Elektrode im Abstand 0,10 cm vom Gitter; 9 Diskriminatoren mit EFP 60-Sekundäremissionspentoden zur Erzeugung einheitlicher Signale kurzer Anstiegszeit; 10 Laufzeitkette mit anschliessender EFP 60-Stufe; 11 Koinzidenzanordnung; 12 Zählratenmeter

Grund des angelegten elektrischen Feldes von der Grösse 0,1 bis 1 kV/cm nach dem feinmaschigen Gitter (7). Hier verlassen die Elektronen den Messraum und treten in den «Stoppraum» ein, der zwischen dem Gitter und dem leitenden sowie transparenten Überzug des Multiplifierfensters liegt. Der Laufweg im Stoppraum ist 1,0 mm, die Feldstärke etwa 12 kV/cm. Infolge dieser hohen Feldstärke, die knapp unter der Durchschlagsfeldstärke liegt, erzeugen die in den Stoppraum tretenden Elektronen bei dem meist verwendeten Druck von 800 Torr ( $E/p$  etwa 15 V/cm Torr) Anregungen und Ionisation. Das dabei entstehende Licht wird vom Quarzfenstermultiplier 51-UVP registriert. Der so erzeugte elektrische Impuls dient als Stoppimpuls der Elektronenwolke.

Start- und Stoppimpuls werden in je einem Diskriminator (9) zu elektrisch einheitlichen Signalen kurzer Anstiegszeit (10 bis 15 m $\mu$ s) umgeformt. Der Startimpuls wird in der Laufzeitkette (10) verzögert (max. 9  $\mu$ s in 120 Stufen à 75 m $\mu$ s) und wiederum durch einen Diskriminator geformt.

Stoppimpuls und verzögerter Startimpuls treffen sich in der Koinzidenzstufe (11), wo sie durch Begrenzer und Klippkabel zu kurzen Rechteckimpulsen (32 m $\mu$ s und 1,35 V) verwandelt an die Schwelle einer auf 1,5 V vorgespannten OA 85 Germaniumdiode gelangen. Die Koinzidenzimpulse werden mit einem Zählratenmeter (12) registriert.

### 3.3 Ionisationskammer

Figur 6 zeigt einen Schnitt durch die Ionisationskammer und die angrenzenden Teile.

Das Poloniumpräparat sitzt auf der polierten Stirnfläche eines Silberstiftes von 0,9 mm Durchmesser. Da alle  $\alpha$ -Spuren möglichst senkrecht zum elektrischen Feld verlaufen sollen, so muss die Abmessung  $Z$  des Kollimatorkanals sehr klein sein gegenüber seiner Länge  $X$  ( $X = 5$  mm,  $Z = 0,1$  mm). Die  $\alpha$ -Aktivität vor der Kanalöffnung war etwa 20 s $^{-1}$ .

Figur 7 zeigt Auf- und Grundriss der  $\alpha$ -Quelle mit Kollimator und Szintillator. Als Szintillator dient ein Plastic (National Radiac) mit einer Abklingzeit von knapp 5 m $\mu$ s. Der Lichtleiter aus Luzit führt das Licht mit geringen Verlusten dem Multiplier RCA 6810 zu, der sehr rasch ansteigende (etwa 8–10 m $\mu$ s) Impulse liefert, die etwa 15mal über dem Untergrund liegen. Die Multipliaerausgangsimpulse, die an der letzten Dynode abgegriffen werden (Fig. 12), betragen etwa 10 bis 20 V und steuern direkt die Diskriminatorstufe (Fig. 13).

Das Gitter, das den eigentlichen Messraum abschliesst, besteht aus einem Phosphorbronzedrahtgeflecht mit 0,1 mm Drahtdurchmesser und 0,27 mm Maschenweite. Es ist straff gespannt und mittels Araldit auf einen Messingring gekittet.

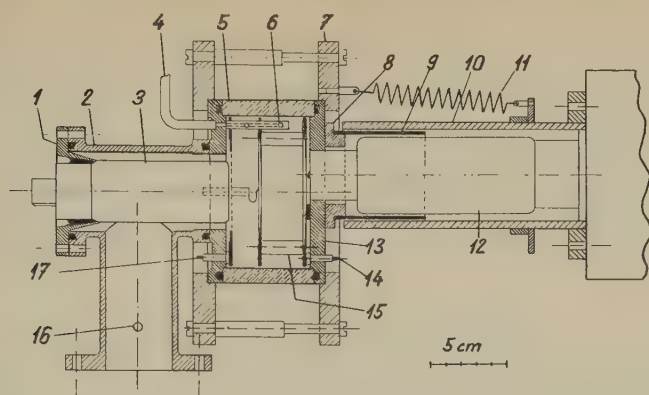


Fig. 6

Querschnitt durch die Ionisationskammer

1 Flansch für Stoppmultiplier; 2 Multipliergehäuse mit Anschlussflansch an den Hahn zur Hochvakuumpumpe; 3 Stoppmultiplier 51-UVP; 4 Anschlussrohr für Gaskreislauf; 5 Keramikzylinder als Kammerwand; 6 Teflonrohr mit seitlichen Bohrungen (leitet das zirkulierende Gas zwischen die Schutzelektroden); 7 Isolier-ring für Kammerverschluss; 8 Isolerring als Träger des Eisenzylinders 9, der auf Kathodenpotential des Startmultipliers ist; 10 Isolierrohr als Multipliergehäuse; 11 Spannfeder zur Anpressung des Startmultipliers an den Lichtleiter (3 Stück); 12 Startmultiplier RCA 6810; 13 Kammerdeckel aus Eisen als Hochspannungselektrode; 14 Anschluss für Schutzelektrode (Teflondurchführung); 15 Keramikstützen als Träger für Schutzelektrode (3 Stück); 16 Anschluss für Gaskreislauf bzw. Vorvakuumpumpe; 17 Gitteranschluss (Teflondurchführung)

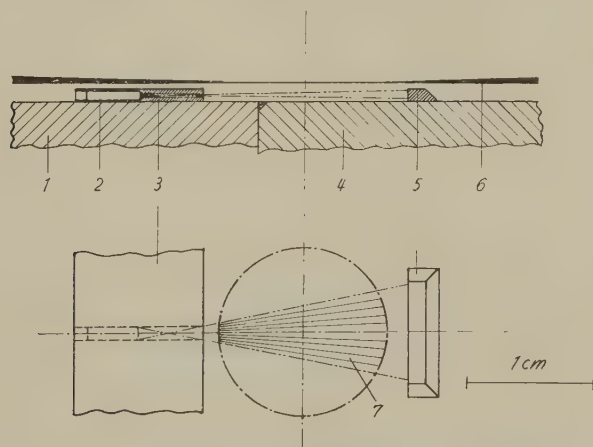


Fig. 7

Auf- und Seitenriss von  $\alpha$ -Quelle und Szintillator

1 Hochspannungselektrode bzw. Kammerdeckel; 2 Silberstift mit Poloniumpräparat; 3 Quellenhalter mit Kollimator; 4 Lichtleiter mit Al-Überzug; 5 Szintillator mit Aluminiumreflektor; 6 Schutzringelektrode; 7 nutzbarer Bereich der  $\alpha$ -Spuren für die Elektronenerzeugung

Der Stoppmultiplier, ein Quarzfenstermultiplier mit Frontkathode, registriert das im Stoppaum entstehende Licht. Die Aussenseite des Quarzfensters ist mit einer leitenden Schicht\*) überzogen, die folgende Eigenschaften hat:

Der elektrische Widerstand einer quadratischen Schichtfläche, gemessen über zwei gegenüberliegenden Seiten, ist etwa  $1\text{ k}\Omega$ ; die Schicht ist reib- und kratzfest. Optische Durchlässigkeit bei:

5000 Å 90% ; 4000 Å 80% ; 3000 Å 50% ; 1900 Å 25%.

### 3.4 Gasreinigung und Gaskreislauf

Ausser bei den Messungen an Stickstoff war das zur Hauptsache verwendete Gas Argon. Es wurde deshalb der Reinigung dieses Gases besondere Aufmerksamkeit geschenkt. Das Flaschenargon (Reinheitsangabe der Firma 99,8%) wurde sogleich nach Einfüllen in die Kammer während nahezu einer Stunde durch einen heissen (etwa  $800^\circ\text{C}$ ) Uranofen gepumpt. Die Grösse der Stoppimpulse, die von der Gasreinheit abhängt, konnte als qualitatives Mass für den Reinheitszustand des Argon verwendet werden. So konnten bei gereinigtem Argon bei den kleinen Zeitkonstanten des Stoppmultipliers (50 bis  $100\text{ m}\mu\text{s}$ ) keine Stoppimpulse mehr beobachtet werden, während sie bei Argon aus der Flasche

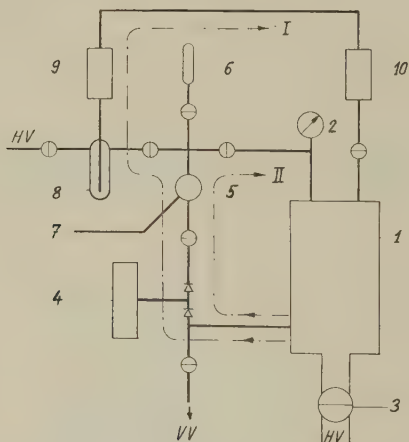


Fig. 8

Schematische Darstellung des Gaskreislaufes

- 1 Ionisationskammer; 2 Manometer; 3 Hochvakuumhahn; 4 Membranpumpe; 5 Mischhahn; 6 Ampulle für Gasproben; 7 Einlass für Zusatzgase; 8 Kühlfalle; 9 Uranofen; 10 Kühler; I Reinigungskreislauf; II Mischkreislauf; HV Hochvakuum; VV Vorvakuum

\*) Wir sind der Firma Gerätebau A.G. in Balzers für die Herstellung dieser Schicht sehr zu Dank verpflichtet.

oder bei gereinigtem Argon mit 0,1%  $N_2$ -Zusatz gut beobachtbar waren und zu Messungen verwendet werden konnten.

Figur 8 stellt schematisch den Gaskreislauf dar. Die Gasreinigung erfolgt im Kreislauf I durch den Uranofen (9); die Herstellung der Gas-mischung geschieht im Kreislauf II unter Zuhilfenahme eines speziellen Hahns (5), der gestattet, ein Zusatzgas in gewünschter Menge einzuschleusen. Dieser Hahn ist dargestellt in Figur 9.

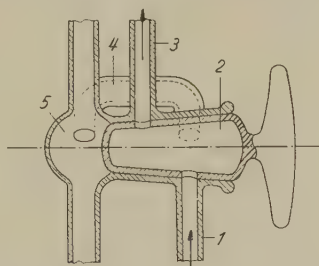


Fig. 9

Schnitt durch den Mischhahn (Fig. 8, Pos. 5)

1 Gaseintritt; 2 Einschleuskammer (drehbarer Hohlzapfen mit drei Stellungen: Durchlass (gezeichnet), Auspumpen, Einbringen des Zusatzgases); 3 Gasaustritt; 4 Verbindungsrohr zum Auspumpen der Einschleuskammer; 5 evakuierter Raum, dauernd an der Hochvakuumpumpe. Um  $120^\circ$  versetzt gegenüber den Anschlüssen 1 und 4 ist der Einlass für die Zusatzgase (Fig. 8, Pos. 7); er ist in dieser Figur nicht gezeichnet, da er vor der Schnittfläche liegt

Die Gaszirkulation erfolgt durch eine Membranpumpe mit rund  $70\text{ cm}^3$  Hubvolumen (Fig. 10). Die Wahl einer Membranpumpe gegenüber einer Zentrifugalpumpe hat folgende Gründe: Während des Pumpvorganges verändert sich der Druck im System periodisch (etwa 10%). Diese Druckveränderungen nebst der Zirkulation sorgen für eine bessere Gasdurchmischung in kleinen Toträumen (Manometer, Rohransätze usw.) als das bei einer stationären Strömung der Fall wäre. Die Pumpe dient auch zur Feinregulierung des Druckes vor der Messung sowie zur Volumverminderung des Systems, um Gasproben ohne Druckverlust entnehmen zu können. Durch Verschliessen des Hahns (4) in der Ölleitung zwischen Membran und Quecksilber wird während der Messung der Druck konstant gehalten.

Die Druckmessung erfolgt mit einem Quecksilbermanometer und einem Druckübertragersystem zwischen Quecksilber und Gas (Fig. 11). Die Teflonmembran des Druckübertragers ist horizontal angeordnet. Bei einseitigem Überdruck legt sich die Membran an die mit feinen Löchern durchbohrten Anschlagsbegrenzungen an. Von der Membran wird der Druck mit gut entgastem Öl auf das eigentliche Manometer übertragen.



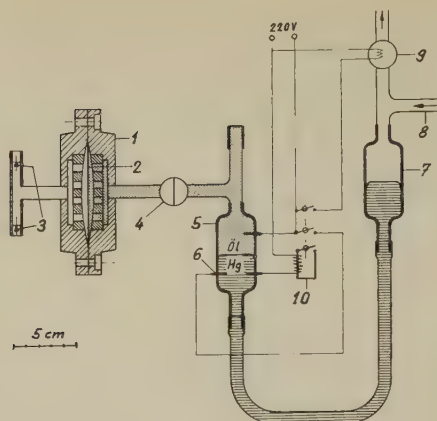


Fig. 10

## Membranpumpe

1 Pumpengehäuse; 2 Teflonmembran; 3 Rückschlagventile; 4 Hahn; 5 Schauglas mit Elektroden; 6 Wolframelektroden für Relaisbetätigung; 7 Kompensationsgefäß; 8 Anschluss für Druckluftflasche mit Reduzierventil; 9 Magnethahn (geschlossen, wenn stromlos); 10 Relais zur Hahnbetätigung

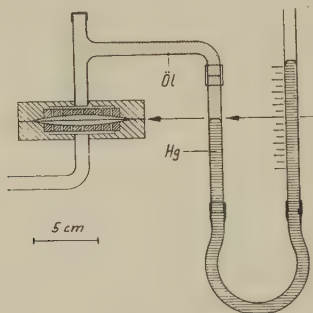


Fig. 11

## Manometer mit Druckübertragungssystem

Zur Festlegung der Nullstellung der Membran wird das rechte Manometerrohr verschoben, bis das Quecksilber im linken Schenkel auf Membranhöhe ist. Die Genauigkeit dieser Druckmessung liegt bei etwa  $\pm 1$  mm; das heisst, bei einem Gesamtdruck von 800 mm ist die relative Genauigkeit rund  $10/100$ .

## 3.5 Elektronischer Teil

In Kapitel 3.2 ist in groben Zügen das Prinzip erwähnt.

Der Startmultiplier RCA 6810 wird mit negativer Hochspannung betrieben. An der letzten Dynode werden positive Impulse abgenommen. Figur 12 zeigt das Prinzipschaltbild des Vervielfacherausganges.





Koinzidenzstufe. Die gleichzeitige Beobachtung mit einem Zählratenmeter verbessert die Ablesegenauigkeit. Über das Auflösungsvermögen handelt der Abschnitt 4.4.

#### 4. Messung

##### 4.1 Einwirkung der Form der Multiplierimpulse auf die Laufzeitmessung

Die elektrischen Signale des Startmultipliers haben eine sehr kurze Anstiegszeit (etwa 5  $\mu$ s). Der Impulsanstieg kann als gleichzeitig mit dem Erzeugungsmoment der Elektronen durch das  $\alpha$ -Teilchen angesehen werden.

Bei den Stopppulsen ist vorerst zu untersuchen, ob sie tatsächlich ein Abbild der Elektronendichtefunktion in der Gitterebene darstellen.

Die Dichte der in den Stoppraum eintretenden Elektronen sowie ihre Energie sind viel zu gering, um im benutzten Gase genügend registrierbares Licht zu erzeugen. Deshalb ist es notwendig, im Stoppraum bei hohen Werten von  $E/p$  (10 bis 20 V/cm Torr) die Elektronen zu beschleunigen, bis sie genügend Licht zu erzeugen vermögen. Man kann annehmen, dass bei fester Stoppraumfeldstärke die Intensität des erzeugten Lichtes proportional zur Elektronenzahl im Stoppraum sei. Der Momentanwert dieser Anzahl ist mit einer sehr kleinen zeitlichen Verschiebung – zur Hauptsache der Laufzeit im Stoppraum – proportional zur Elektronendichte in der Gitterebene. Die Stoppraumlafzeit und die endliche Dauer der Lichtprozesse bewirken ein «verschmiertes» Abbild der Elektronendichtefunktion der Gitterebene.

Um einen quantitativen Anhaltspunkt über die Grösse der durch die Stoppraumlafzeit und die Lichtemission bewirkten Verzögerungen zu erhalten, wurde die  $\alpha$ -Quelle direkt auf das Gitter gesetzt, so dass die  $\alpha$ -Spuren durchschnittlich 0,5 mm vor dem Gitter verliefen.

Es bedeuten:  $\tau_z$  die auf Grund der Diffusionstheorie errechnete Impulsanstiegszeit, wenn die Elektronen den Messweg  $z$  zurücklegen.

$\tau'_z$  die gemessene Impulsanstiegszeit beim nämlichen Messweg  $z$ .

Nach Gleichung (11) folgt bei gleichem  $E/p$ , das heisst gleichem  $w$  für zwei verschiedene Messwege  $z_0$  und  $z_1$ , die Proportion:

$$\frac{\tau_{z_0}}{\tau_{z_1}} = \sqrt{\frac{z_0}{z_1}} \quad (24)$$

Die Stoppraumfeldstärke soll ebenso wie die Messraumfeldstärke für beide Laufwege  $z_0$  bzw.  $z_1$  unverändert bleiben.

Durch die Vorgänge im Stoppraum sind die beiden Messgrössen  $\tau'_{z_0}$  und  $\tau'_{z_1}$  um die gleiche Zeitdauer  $\Delta\tau$  zu gross.

Reduziert man den Messwert  $\tau'_{z_1}$  mit  $\sqrt{z_0/z_1}$ , deren Grösse im vorliegenden Falle 0,1 ist, so folgt:

$$\tau'_{z_1} \sqrt{\frac{z_0}{z_1}} \equiv (\tau_{z_1} + \Delta\tau) \sqrt{\frac{z_0}{z_1}} = \tau_{z_0} + 0,1 \cdot \Delta\tau \quad (25)$$

Die Grösse  $\Delta\tau \equiv \tau' - \tau_z$  findet man mit Gleichung (25) zu

$$\tau'_{z_0} - \tau'_{z_1} \sqrt{\frac{z_0}{z_1}} = 0,9 \cdot \Delta\tau \approx \Delta\tau \quad (26)$$

Es zeigt sich, dass die Differenz (26) bei höhern Werten von  $E/p$  im Messraum (von 1 bis etwa 0,4) einigermassen konstant ist (etwa 50  $\mu\text{s}$ ) und bei Abnahme von  $E/p$  sich verkleinert. Diese Verkleinerung lässt sich durch einen geringen Durchgriff des konstanten Stoppraumfeldes in das abnehmende Messraumfeld erklären. Das Experiment zeigt hingegen auch, dass der Durchgriff des Stoppraumfeldes bei der Laufzeitmessung ( $z = 50 \text{ mm}$ ) wirklich vernachlässigbar ist.

#### 4.2 Gasanalysen

Nach Abschluss jeder Messung wurde jeweils eine Gasprobe zur Analyse in eine Glasampulle eingeschmolzen. Die mittels Massenspektrometer durchgeführten Gasanalysen ergaben folgendes Ergebnis: \*)

*Alle Angaben sind in Einheiten von  $10^{-5}$  des Totaldruckes; Messgenauigkeit 15–20%*

Zusammensetzung	H <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>4</sub>	N <sub>2</sub>	O <sub>2</sub>	A	CO <sub>2</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>2</sub>	a)	b)	c)
A + 0,1 % N <sub>2</sub>	12	0,9	2,5	100	6		< 0,6	1	—	—	—
A + 0,19% N <sub>2</sub>	70	2	2,5	180	5		4	2,5	≤ 1	≤ 1	≤ 2,5
A + 0,29% N <sub>2</sub>	25	0,6	1,2	270	4		1,0	2	≤ 0,2	≤ 1,2	≤ 3
A + 0,48% N <sub>2</sub>	35	0,6	1,2	490	6		1,0	2	≤ 0,3	≤ 1,2	≤ 3
A + 1,90% N <sub>2</sub>	25	0,5	1,3	2200	5		1,5	1,5	≤ 1	≤ 1	≤ 2,5
A + 4,60% N <sub>2</sub>	35	0,6	1,1	4300	6		0,8	1,5	≤ 0,5	≤ 1,5	≤ 4
N <sub>2</sub>	140	0,6	2		10	30	2,1	< 0,5	≤ 0,5	≤ 0,5	≤ 1,5
A + 2,0 % CO <sub>2</sub>	12	1,6	6	—	< 5		2080	—	—	—	—
A + 4,6 % CO <sub>2</sub>	20	0,7	1,1	< 3	< 8		4950	1,5	≤ 0,3	≤ 1	≤ 2,5

a) Totalverunreinigung von Methyl-, Äthyl-, Propyl-, Butylalkohol und Diäthyläther.

b) Totalverunreinigung von Propen, Buten, Hexen, Hepten und Oktylalkohol.

c) Totalverunreinigung von Butan, Pentan, Hexan, Heptan, Oktan und Penten.  
— bedeutet nicht gemessen.

#### 4.3 Spannungsmessung

Die Kammerspannung  $U$ , aus der sich die Feldstärke  $E$  berechnet, wurde mit Hilfe eines elektrostatischen Voltmeters (STARKE und SCHRÖDER) direkt zwischen Gitter und Hochspannungselektrode relativ gemessen. Die Reproduzierbarkeit dieser Messung liegt bei wenigen Promillen.

\*) Herrn Prof. G. HOUTERMANS und Herrn Dr. EBERHARDT danken wir für die Durchführung der Gasanalysen.



Zur Eichung diente ein Siemens-Halske Präzisionsdrehspul-Instrument. Ein speziell angefertigter Vorwiderstand aus Konstantandraht (Silkoband) von 1,499 MOhm erweiterte den Messbereich des Instrumentes auf 4500 V. Diese Spannungsmessanordnung wurde in einer Kompensationschaltung mit zwei verschiedenen Normalelementen verglichen. Die Spannungsmessung erreicht eine Genauigkeit von 0,5 bis 1%.

#### 4.4 Laufzeitmessung

Die momentane Grösse der Stoppimpulse ist abhängig von der Gitterspannung, der Wanderungsgeschwindigkeit im Messraum sowie dem vorliegenden Gase.

Meistens wurde die Gitterspannung knapp unter der Durchschlagsspannung gewählt, einerseits um grosse Lichtausbeute zu erhalten, anderseits um die Elektronenwanderungszeit im Stoppraum klein zu halten. Vor jeder Messung wurde die Multipliiervverstärkung auf den grössten zulässigen Wert gebracht. Nun wurde die Messraumspannung  $U$  über den ganzen Messbereich variiert um festzustellen, welches die kleinste auftretende Stoppimpulsgrösse war. Diese Stoppimpulsgrösse wurde nun gewählt (zum Beispiel  $U_0 = 10$  V) und während der Messung durch Variation der Multipliiervverstärkung konstant gehalten.

Bei festem Diskriminatorpegel von  $\nu U_0$  Volt ( $\nu$  meistens 0,2 bis 0,5) sowie der mittels Oszillograph gemessenen Anstiegszeit  $\tau$  lässt sich die Zeit  $\tau_\nu$  (Fig. 2) berechnen, um die das Stoppsignal verfrüht ist. Diese Zeitkorrektur, die zu der an der Laufzeitkette abgelesenen Zeit zu addieren ist, berechnet sich zu

$$\tau_\nu = 0,8 \tau \sqrt{\ln \frac{1}{\nu}} \quad (27)$$

Die Wanderungszeit im Stoppraum einschliesslich Abklingzeit der Lichtprozesse ist dabei nicht berücksichtigt. Der dadurch bedingte Fehler dürfte meistens unter 0,5% liegen. Dieser Fehler wird teilweise durch den erwähnten geringen Durchgriff des Stoppraumfeldes in das Messraumfeld kompensiert.

Zur Laufzeitmessung wurde meist zuerst die Kammerspannung grob gewählt und anschliessend die Verzögerungszeit aufgesucht, die die grösste Koinzidenzimpulsrate lieferte. Bei Laufzeiten, die gross waren gegenüber der Stufenzeit von 75 m $\mu$ s, wurde die Kammerspannung fein nachgestellt, bis die Koinzidenzimpulsrate maximal wurde und die benachbarten Verzögerungsstufen gleiche Impulsraten aufwiesen. Bei Laufzeiten, denen gegenüber 75 m $\mu$ s schon eine bedeutende Stufe darstellten, wurde durch Spannungsvariation erreicht, dass zwei unmittelbar benachbarte Verzögerungsstufen die gleiche Koinzidenzrate zeigten.

Als Beispiel für die zeitliche Auflösung sei aufgeführt:

Argon + 1% N<sub>2</sub>

Laufzeitkette	Pos.	Imp./min
1. $E = 695 \text{ V/cm}$	33	0
	34	400
	35	0
2. $E = 300 \text{ V/cm}$	61	0
	62	200
	63	200
	64	0

Das erste Beispiel zeigt eine Messung bei der das zeitliche Auflösungsvermögen der Koinzidenzapparatur ersichtlich nicht ausgenutzt wird; eine Stufe der Laufzeitkette ist bereits 3% des Messwertes.

Das zweite Beispiel zeigt eine Messung mit voller Ausnutzung des Auflösungsvermögens.

### Messergebnisse

Die aus den Messungen der Laufzeit berechneten Werte der Wanderungsgeschwindigkeit in Abhängigkeit von der durch den Gasdruck dividierten Feldstärke sind dargestellt in den Figuren 15 bis 18.

Die Figuren 15 und 16 stellen die Ergebnisse der Messungen an den Gasmischungen A-N<sub>2</sub> dar.

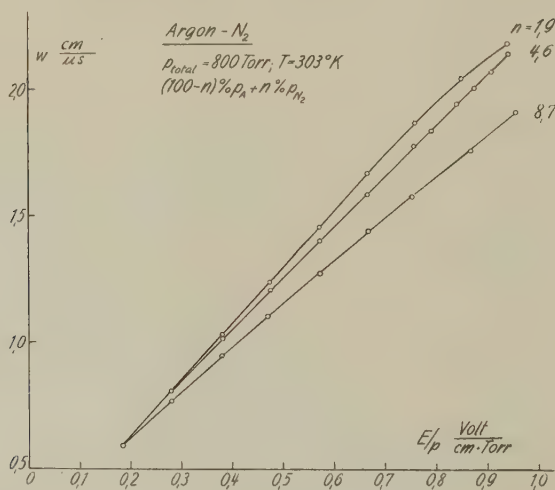


Fig. 15

Elektronen-Wanderungsgeschwindigkeit in A-N<sub>2</sub>

Die vollständige Reproduzierbarkeit der Herstellung von A-N<sub>2</sub>-Mischungen ist allgemein besser als 0,5%. Unter unabhängig hergestellten Mischungen ist dabei zu verstehen, dass der ganze Messvorgang einschliesslich aller Vorbereitungen – Auspumpen der Kammer auf Hoch-

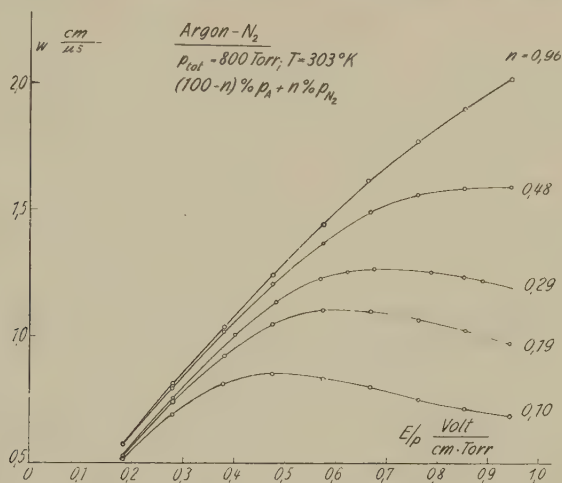


Fig. 16  
Elektronen-Wanderrungsgeschwindigkeit in A-N<sub>2</sub>

vakuum, Einfüllen von Argon und Reinigen im Kreislauf durch den Uranofen, Zugabe des N<sub>2</sub> (bzw. CO<sub>2</sub>) und Mischen im «kleinen» Kreislauf – wiederholt wurde.

Die hier vorliegenden Wanderungsgeschwindigkeitsmessungen in A-N<sub>2</sub>-Mischungen sind mit einer Ungenauigkeit von etwa 1,5% behaftet, die  $E/p$ -Werte mit einer solchen von rund 1%.

Figur 17 gibt die Resultate der Messungen an A-CO<sub>2</sub>-Mischungen wieder. Bei diesen Gasmischungen waren die Stoppimpulse meistens bedeutend kleiner als bei den A-N<sub>2</sub>-Mischungen. Die Durchführung der Messungen war schwieriger; das Anbringen der Laufzeitkorrektur unsicherer. Die Abweichungen der Wanderungsgeschwindigkeitsmessungen unabhängig hergestellter Mischungen betrugen rund 1,5%, so dass mit Einbezug der Laufzeitkettentoleranz die absoluten Werte zu  $\pm 2,5\%$  dargestellt sind; die  $E/p$ -Werte sind auf rund 1% bekannt. Die gestrichelt eingezeichneten Kurvenstücke entstammen Messungen von ENGLISH und HANNA<sup>7)</sup> an Mischungen von 1%, 2,1% und 5%.

Figur 18 gibt die Messergebnisse an Reinstickstoff wieder und vergleicht diese mit den Ergebnissen anderer Autoren. Die Genauigkeitstoleranz ist für die Wanderungsgeschwindigkeiten 1,5%, für die  $E/p$ -Werte 1%.

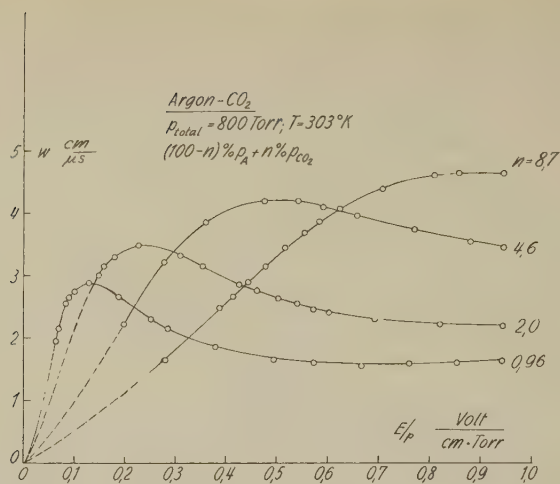


Fig. 17  
 Elektronen-Wandergeschwindigkeit A-CO<sub>2</sub>

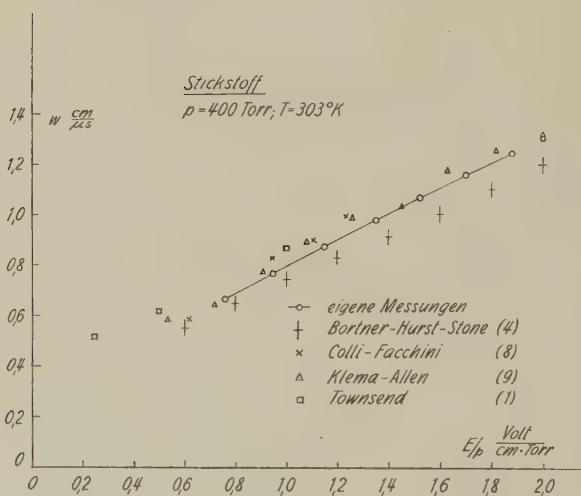


Fig. 18  
 Elektronen-Wandergeschwindigkeit in N<sub>2</sub>; Vergleich mit den Messungen anderer Autoren

### Diskussion

Betrachtet man den Kurvenverlauf der Figuren 15 und 17, so fällt sofort auf, dass die Wandergeschwindigkeit bei bestimmten Gas-mischungen im vorliegenden Messgebiet ein Maximum durchläuft. Im

weiteren bemerkt man auch, dass die Wanderungsgeschwindigkeiten in den Gasmischungen grösser sind als in den einzelnen Komponenten. Es drängt sich sofort die Frage nach dem Mechanismus der Stössvorgänge der Elektronen mit den Gasatomen oder Molekülen auf. Die Beantwortung dieser Frage setzt die Kenntnis der  $\varepsilon$ -Zahlen voraus, die, wie am Schluss des Kapitels 2 gezeigt wurde, aus dem Kurvenanstieg der Stoppimpulse berechnet werden können. In der dargelegten Arbeit wurden die Stoppimpulsanstiege lediglich zu Korrekturzwecken verwendet. Die aus den Kurvenanstiegen nach Gleichung (23) errechneten  $\varepsilon$ -Werte sind wohl von einer vernünftigen Grösse, aber noch zu wenig genau, um sie für weitere Aussagen verwenden zu können.

Vergleicht man das dargelegte Messverfahren mit den bis dahin bekannten, so stellt man folgendes fest:

Bei allen Methoden – die klassischen ausgenommen – arbeitet man mit Elektronenlawinen, die meist in statistischer Zeitfolge auftreten. Jeder einzelne Elektronenschwarm gestattet prinzipiell die Messung der Wanderungsgeschwindigkeit sowie der Diffusionskonstante bzw. der kinetischen Gastemperatur  $\varepsilon$ . Die verschiedenen Messgrössen treten jedoch miteinander in Erscheinung. Für eine exakte Messung der Wanderungsgeschwindigkeit muss der Diffusion Rechnung getragen werden.

Die vorliegende Methode gestattet die direkte Beobachtung der Longitudinaldiffusion des Elektronenschwarms. Obwohl die Methode von STEVENSON<sup>3)</sup> das prinzipiell auch gestattet, so hat die hier beschriebene den Vorteil, dass sie eine bedeutend grössere Anzahl von Elektronen für das Stoppsignal verwendet und dass ein Multiplikationsprozess im homogenen elektrischen Feld stattfindet.

Es ist naheliegend, die vorliegende Einrichtung dahin abzuändern, dass an Stelle des Multipliers ein Kollektor gesetzt wird, der die ankommenden Elektronen nach einer vorausgehenden Verstärkung durch Multiplikation im Stoppraum registriert. In dieser Richtung ist eine weitere Arbeit im Gange. Die direkte Beobachtung der elektrischen Impulse erweitert die Anwendung der Methode bedeutend, da keine Anforderungen an die Leuchteigenschaft des Füllgases gestellt werden müssen.

Der Kommission für Atomwissenschaft des Nationalfonds danken wir für die finanzielle Unterstützung dieser Arbeit. Danken möchten wir auch Herrn WEYENETH und Herrn ABT für die Herstellung der verschiedenen Messeinrichtungen, ebenfalls Herrn FINK für seine Mithilfe bei den Messungen.



## Literaturverzeichnis

- <sup>1)</sup> TOWNSEND and BAILEY, Drift velocity of Electrons in  $N_2$ . *Phil. Mag.* **42**, 875 (1921).
- <sup>2)</sup> BRADBURY and NIELSON, Absolute Values of the Electron Mobility in Hydrogen. *Phys. Rev.* **49**, 388 (1936).
- <sup>3)</sup> STEVENSON, Electron Velocities in Geiger Counter Gas Mixtures. *Letter J. R. S. I.* **23**, 93 (1952).
- <sup>4)</sup> BORTNER, HURST and STONE, Drift Velocities of Electrons in Some Commonly Used Counting Gases. *R. S. I.* **28**, 103 (1957).
- <sup>5)</sup> ROSSI and STAUB, *Ionization Chambers and Counters*. McGraw-Hill Book Company, Inc. New York, Toronto, London 1949, Chapter I.
- <sup>6)</sup> LEWIS and WELLS, *Millimicrosecond Pulse Techniques*. Pergamon Press London 1956.
- <sup>7)</sup> COLLI and FACCHINI, Drift Velocity of Electrons in Argon. *R. S. I.* **25**, 89 (1952).
- <sup>8)</sup> KLEMA and ALLEN, Drift Velocities of Electrons in Argon, Nitrogen and Argon-Nitrogen Mixtures. *Phys. Rev.* **77**, 661 (1950).
- <sup>10)</sup> KIRSHNER and TOFFOLO, Drift Velocity of Electrons in Argon and Argon Mixtures. *J. appl. Phys.* **23**, 594 (1952).
- <sup>11)</sup> NIELSON, Absolute Values of the Electron Drift Velocity in Nitrogen, Helium, Neon and Argon. *Phys. Rev.* **50**, 950 (1936).

# Über *Maser-Wirkung* im optischen Spektralgebiet und die Möglichkeit absolut negativer Absorption für einige Fälle von Molekülspektren (Licht-Lawine)

von F. G. Houtermans

Physikalisches Institut der Universität Bern

Als *Maser* werden Anordnungen bezeichnet, in welchen die Population eines energetisch höheren Zustands eines atomaren Systems pro Einheit des statistischen Gewichts absolut höher ist als diejenige in einem energetisch tieferen Zustand. In solchen Systemen ist durch den Elementarprozess der erzwungenen Emission (E 11) die Möglichkeit gegeben, das System zu kohärenten Schwingungen anzuregen oder zur Verstärkung eingestrahelter Frequenzen zu benützen. In allen Fällen setzt die *Maser-Wirkung* die Existenz eines extremen thermodynamischen Nicht-Gleichgewichts voraus, das durch Einstrahlung geeigneter Frequenzen in einem Hohlraum-Oszillatore, optischer Pumpen oder Elektronenstoss-Anregung bewirkt und durch eine für das Verhältnis der Populationen des höheren und tieferen Anregungszustandes massgebende relative negative Temperatur charakterisiert wird.

Während im Mikrowellenbereich die *Maser-Technik* bis zu hoher Vollkommenheit ausgearbeitet ist und zum Beispiel auf dem Gebiete der Radioastronomie bereits wichtige Anwendungen gefunden hat, ist die Anwendung der erzwungenen Emission auf das infrarote und optische Spektralgebiet erst kürzlich durch SCHAWLOW und TOWNES und andere (PRO 58, SCH 58) diskutiert worden.

Die erwähnten Arbeiten diskutieren Fälle von Atomspektren, vornehmlich der Alkalien oder Edelgase, in welchen die *Maser-Bedingungen* der Überpopulation eines energetisch höheren von zwei angeregten Zuständen durch optisches Pumpen oder durch geeignete Bedingungen der Elektronenstoss-Anregung oder durch Stösse zweiter Art eines Zusatzgases erreicht wird. Die Publikation dieser Arbeiten veranlasst mich, einige Überlegungen zu publizieren, die ich 1932 vorgeschlagen und seither mit zahlreichen Freunden und Kollegen diskutiert, aber aus technisch bedingten Gründen niemals zu publizieren Gelegenheit gefunden habe.

Es gibt nämlich in der Molekularspektroskopie eine Anzahl von Emissionsspektren von angeregten Molekülen, die *automatisch* die oben er-

wähnte *Maser*-Bedingung der absoluten Überpopulation eines Zustandes höherer Energie gegenüber dem Endzustand erfüllen.

Es handelt sich hier um Spektren, in denen im oben definierten Sinne der Fall einer praktisch unendlich hohen negativen *relativen* Temperatur zwischen zwei Zuständen automatisch realisiert ist.

Diejenigen Molekularspektren, für welche die *Maser*-Bedingungen automatisch erfüllt sind, sind die unter Emission eines Photons produzierten Spektren eines angeregten Moleküls, die zu einem Endzustand auseinanderfliegender Atome führen, deren relative kinetische Energie weit über der mittleren kinetischen Energie der in der Gasentladung vorliegenden Dissoziations- und translatorischen Gastemperatur liegt.

Es sind dies die in der Nomenklatur von FINKELNBURG (Fi 38a) als Emissionsspektren der Typen I, II und III bezeichneten Spektren, die namentlich bei solchen Elementen auftreten, die im Grundzustand keine oder nur locker gebundene van-der-Waals-Moleküle bilden, aber relativ stark gebundene angeregte Molekülzustände besitzen. Es sind dies vor allem die Edelgase, die Erdalkalien sowie die Elemente Mg, Cd, Hg sowie das Triplettsystem des Wasserstoffs und der Alkalimoleküle.

Als typisches Beispiel eines solchen kontinuierlichen molekularen Zerfallsspektrums mag das 1865 von PLÜCKER und HITTORF (PL 1865) entdeckte  $H_2$ -Kontinuum dienen, das sich von  $\lambda$  5000 Å bis 1200 Å mit einem Maximum bei 2500 Å erstreckt (Fi 38a, S. 185) und als kontinuierliche Lichtquelle für Absorptionsmessungen im UV in der Wasserstofflampe vielfache Anwendung gefunden hat.

Nach der von WINAUS und STUECKELBERG (Wi 28) gegebenen Deutung stellt das genannte grosse Wasserstoffkontinuum einen Übergang aus dem dem Triplettsystem angehörigen Zustand  $1s\sigma 2s\sigma^3\Sigma_g^-$  in den Zustand  $1s\sigma 2p\sigma^3\Sigma_u^-$  dar. Der letztgenannte Zustand ist jedoch nach dem Pauliprinzip nicht stabil, sondern ist repräsentiert durch zwei neutrale H-Atome im Grundzustand, die mit parallelem Spin mit einer relativen kinetischen Energie zwischen etwa 2 eV und etwa 8 eV auseinanderfliegen. Unter den für die Emission des Wasserstoffkontinuums in Frage kommenden Bedingungen hinsichtlich Druck und Temperatur kommen aber freie Atome, die sich mit solchen Energien und parallelem Spin aufeinander zu bewegen, praktisch überhaupt nicht vor, da die Population dieses Zustandes durch die Dissoziationstemperatur und die Translations-temperatur des Gases gegeben ist, die hinreichend niedrig gehalten werden können. Überdies wird die durch die Emission des Wasserstoffkontinuums den entstehenden neutralen H-Atomen erteilte Vorzugsenergie schon beim ersten Zusammenstoß dissipiert. Für alle praktischen Zwecke kann also die Population des Zustandes 1 (Fig. 1) vollkommen vernachlässigt werden, so dass eine echte optische Reabsorption zuzufolge

der Existenz der Einsteinschen Übergangswahrscheinlichkeit  $B_{12}$  vollkommen vernachlässigt werden kann. Die Population des Zustandes 2 relativ zu 1 lässt sich also durch eine praktisch unendlich hohe relative negative Temperatur beschreiben. Hingegen wird der Zustand 2 durch

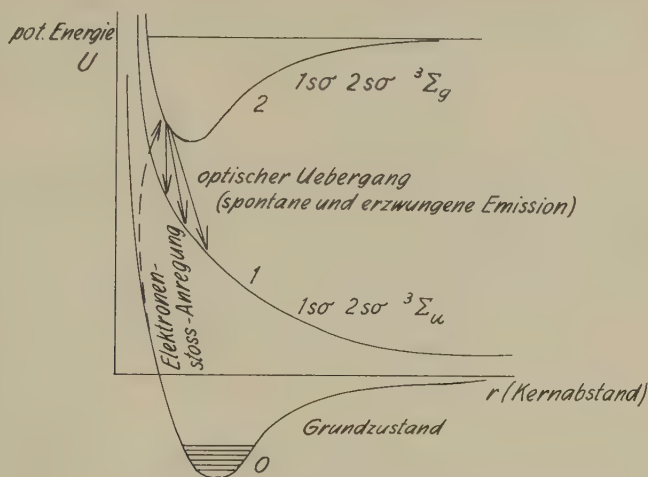


Fig. 1

Übergangsschema des kontinuierlichen  $H_2$ -Spektrums  
nach WINAUS und STUECKELBERG (Wi 28).

Elektronenstoss-Anregung aus dem gebundenen Grundzustand des Moleküls angeregt und unter normalen Bedingungen, solange die erzwungene Emission neben der spontanen Emission keine wesentliche Rolle spielt, durch spontane Emission mit der Wahrscheinlichkeit  $A_{21}$  entleert. Da, wie oben begründet, eine optische Reabsorption durch den Zustand 1 nicht stattfindet, werden Photonen der fraglichen Frequenz, die in ein das  $H_2$ -Kontinuum emittierendes Plasma eingesandt werden, aber natürlich auch die von diesem spontan emittierten Photonen erzwungene Emission der Moleküle des Zustandes 2 auslösen, die genau die Richtung des die erzwungene Emission auslösenden Lichtquants hat (E 11).

Ein in ein solches Plasma, das sich zum Beispiel in einer zylindrischen Röhre befinde, in axialer Richtung eintretender Lichtstrom der Intensität  $I_0$  wird demnach nach einer durchstrahlten Schichtdicke  $x$  auf die Intensität

$$I(x) = I_0 e^{+\mu x} \quad (1)$$

anwachsen. Die Entwicklung einer solchen «Lichtlawine» findet erst dadurch ihre Grenze, dass der hier geschilderte Prozess der erzwungenen Emission selbst, die Dissoziations- und Translationstemperatur des

Plasmas, das sich ursprünglich in einem extremen Nicht-Gleichgewichtszustand befindet, soweit erhöht, dass sich schliesslich ein Boltzmannsches Gleichgewicht einstellt, in welchem echte Reabsorption des Zustandes (1) einsetzt.

Die spektrale Verteilung eines durch die negative Absorption einer «Lichtlawine» verstärkten Spektrums bildet das vollständige Gegenstück der bekannten Abflachung einer Spektralverteilung durch positive Reabsorption (vgl. zum Beispiel MI 34, S. 104). Da in jedem Spektralintervall der Breite  $d\nu$  der Koeffizient der erzwungenen wie der echten Absorption streng proportional der spontanen Emissionswahrscheinlichkeit im gleichen Spektralintervall ist, ist der negative Absorptionskoeffizient der spontanen Emissionswahrscheinlichkeit pro Frequenzeinheit streng proportional. Eine spektrale Verteilung der spontanen Emission mit einem, wenn auch flachen Maximum wird daher durch eine hinreichende Schichtdicke erzwungener Emission verstärkt zu einem Spektrum mit einem immer steiler werdenden Maximum, schliesslich zu einer «scheinbaren Spektrallinie» in seiner relativen Verteilung deformiert.

Wir sehen also (Fig. 1), dass ein Plasma, in welchem ein Zerfallsspektrum eines Moleküls aus dem Zustand 2 in Zustand 1 emittiert wird, automatisch die Bedingung eines 3-Zustands-Masers erfüllt. Aus dem Grundzustand 0 wird durch Elektronenstoss der Zustand 2 aufgefüllt, dessen Population damit pro Einheit des statistischen Gewichts diejenige des Zustands 1 bei weitem übersteigt, da dessen Population wegen seiner Kurzlebigkeit praktisch völlig zu vernachlässigen ist. Photonen des Übergangs  $2 \rightarrow 1$  bewirken daher erzwungene Emission des Zustandes 2 und Auslösung einer Lichtlawine.

Um wenigstens eine rohe Abschätzung der Grössenordnung des negativen Absorptionskoeffizienten  $\mu^-$  für einen Übergang  $2 \rightarrow 1$  in einem solchen Plasma vorzunehmen, wollen wir folgende vereinfachende Annahmen machen: 1. Wir fassen alle Oszillations- und Rotationszustände des Elektronenzustandes 2 zu einem zusammen und ordnen diesem ein mit den Populationen gemitteltes statistisches Gewicht  $\bar{G}_2$  zu. 2. Wir setzen das statistische Gewicht des Zustandes 1  $G_1 = \bar{G}_2$ . 3. Wir vernachlässigen vollständig die im Plasma vorhandene Population  $N_1$  des Zustandes 1 gegen diejenige  $N_2$  des Zustandes 2, das heisst, wir beschreiben das Verhältnis der Populationen von 2 und 1,  $N_2/N_1$  durch eine unendlich hohe relative negative Temperatur. 4. Wir approximieren die spektrale Verteilung der spontanen Emission von 2 nach 1 durch eine Rechteckverteilung der «ganzen» Breite  $\Delta\nu$ , indem wir, wenn  $I(\nu)$  die im Intervall zwischen  $\nu$  und  $\nu + d\nu$  ausgestrahlte Intensität dieses spontanen Übergangs bedeutet,



$$\int_0^{\infty} I(\nu) d\nu = I_0 \Delta\nu \quad (2)$$

schreiben, wo  $I_0$  die Intensität bei derjenigen Frequenz  $\nu_0$  sei, bei welcher das Intensitätsmaximum des Spektrums der spontanen Emission  $2 \rightarrow 1$  liegt. 5. Wir nehmen an, die ganze mittlere Breite des Emissionsspektrums  $2 \rightarrow 1$ ,  $\Delta\nu$ , sei

$$\Delta\nu \ll \nu_0 \quad (3)$$

eine Voraussetzung, die zum Beispiel für das oben angeführte grosse  $H_2$ -Kontinuum sicher nicht gut erfüllt ist, aber für die später zu diskutierenden Kontinua einigermaßen erfüllt ist. Unter den Voraussetzungen 1.–5. gestaltet sich die Abschätzung der Grössenordnung des Koeffizienten der negativen Absorption, bzw. der negativen Strahlungslänge der Lichtlawine  $A^-$

$$A^- = \frac{1}{\mu^-} = \frac{1}{N_2 \sigma^-} \quad (4)$$

überaus einfach.

Bezeichnen wir mit  $\sigma_n^-$  den Wirkungsquerschnitt eines Moleküls im Zustand 2 für erzwungene Emission, wenn seine Spektralverteilung durch die natürliche Linienbreite

$$\gamma = A_{21} \quad (5)$$

gegeben wäre, wo  $A_{21}$  die spontane Übergangswahrscheinlichkeit ist und

$$u = \frac{4\pi}{\gamma} (\nu - \nu_0) \quad (6)$$

dann ist

$$\sigma_n(u) = \sigma_{n,0} \cdot \frac{1}{1+u^2} \quad (7)$$

wo

$$\sigma_{n,0} = \frac{\lambda_0^2}{2\pi} \quad (8)$$

den Wirkungsquerschnitt der positiven Absorption von  $1 \rightarrow 2$ , sowie denjenigen der erzwungenen Emission  $2 \rightarrow 1$  unter der Voraussetzung 2. in der Linienmitte bedeutet.

In Wirklichkeit ist die tatsächliche Breite des spontanen Emissionsspektrums  $2 \rightarrow 1$  nicht durch die natürliche Linienbreite, sondern durch die Verteilung der Eigenfunktion des Moleküls im Zustand 2, die von dessen Quantenzahlen abhängt, sowie durch die Verbreiterung gegeben, die durch die quantenmechanische Formulierung des Franck-Condon-Prinzips gegeben ist. Diese führt zum Beispiel für den Fall des Plücker-Hittorfschen Wasserstoffkontinuums zu einer Spektralbreite von vielen

tausend Ångström. In jedem Falle gilt jedoch gemäss der Voraussetzung 4., dass

$$\sigma_{21}^- \Delta\nu = \int_0^\infty \sigma_n(\nu) d\nu = \frac{\gamma}{4\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \sigma_n(u) du \quad (9)$$

$$\sigma_{21}^- \Delta\nu = \frac{\lambda_0^2}{8\pi} \gamma \quad (10)$$

und

$$\sigma_{21}^- = \frac{\lambda_0^2 \gamma}{8\pi \Delta\nu} \quad (11)$$

ist unter den genannten Voraussetzungen der Wirkungsquerschnitt des Zustandes 2 für erzwungene Emission.

Nachdem wir somit einen überaus einfachen Ausdruck für  $\sigma_{21}^-$  gewonnen haben, wenden wir uns einer Abschätzung der Population  $N_2$  des Zustandes 2 zu. Diese gewinnen wir aus der spontanen Emission  $2 \rightarrow 1$ . Ist nämlich  $W_{21}$  unter den im Plasma herrschenden Bedingungen die im ganzen Spektrum pro Sekunde und Kubikzentimeter spontane emittierte Leistung, so ist gemäss Voraussetzung 5.

$$W_{21} = h \nu_0 L_{21} \quad (12)$$

wo  $L_{21}$  die Anzahl der pro Sekunde und Kubikzentimeter vom Plasma emittierten Lichtquanten des Spektrums  $2 \rightarrow 1$  ist. Da nun

$$L_{21} = N_2 \cdot A_{21} = N_2 \gamma \quad (13)$$

wird

$$N_2 = \frac{L_{21}}{\gamma} = \frac{W_{21}}{h \nu_0 \gamma} \quad (14)$$

und die Ver-e-fachungslänge der Lichtlawine,  $A^-$

$$A^- = \frac{1}{N_2 \sigma_{21}^-} = \frac{8\pi h c}{\lambda_0^3} \cdot \frac{\Delta\nu}{W_{21}} \quad (15)$$

Bemerkenswert an (15) ist, dass  $A^-$  sich als unabhängig von der spontanen Übergangswahrscheinlichkeit  $A_{21} = \gamma$  erweist, da diese sowohl in  $W_{21}$  wie in  $\sigma_{21}^-$  eingeht und sich daher heraushebt.

Einige Fälle von Zerfallsspektren angeregter Moleküle. Eine gute Zusammenstellung der älteren Literatur über kontinuierliche Molekülzerfallsspektren, die in Emission auftreten, findet sich bei FINKELNBURG (Fr 38a). Das erwähnte grosse Wasserstoffkontinuum, das hier zur Erläuterung des Bestehens der 3-Stufen-Maser-Bedingung diente, selbst, dürfte für eine praktische Realisierung zunächst wohl kaum in Frage kommen, weil seine effektive spektrale Breite  $\Delta\nu$  so gross ist, dass  $A^-$  für praktische Zwecke zu hohe Werte annehmen würde, wenn es nicht gelingt, ganz spezielle Anregungsbedingungen, etwa bei hohen Drucken und in sehr kondensierten Entladungen, zu finden, die  $A^-$  hinreichend herabsetzen. Die Existenz eines analogen Kontinuums des  $H_2^+$ -Ions zwischen

5300 Å und 4150 Å ist noch umstritten (BR 29, HE 27, HU 31, STE 36). Eine weitere Möglichkeit bieten die Emissionskontinua der Edelgase, so das des Heliums zwischen 1100 Å und 600 Å (HO 30a, HO 30b, HEN 32), sowie ein langwelliges Kontinuum (WEI 31, TO 32, SP 31), dessen Deutung noch unsicher ist.

Interessant sind in diesem Zusammenhang gleichfalls die bei höheren Drucken auftretenden Kontinua der Edelgase Neon und Argon (MC 32, MC 33, JO 32) sowie besonders von Krypton und Xenon (FI 38b), doch ist auch hier zu wenig bekannt, um detaillierte Rechnungen zu ermöglichen. Das gleiche gilt von einigen Emissionskontinua der Alkalien, zum Beispiel dem des Natriumdampfes mit Maxima bei 4364 Å und 4526 Å (BA 31, KU 32). Am besten untersucht sind die Kontinua der Moleküle der zweiwertigen Metalle. Während die Molekülkontinua der Metalle  $\text{Be}_2$ ,  $\text{Mg}_2$ ,  $\text{Ca}_2$ ,  $\text{Sc}_2$  und  $\text{Ba}_2$  wenig bekannt sind, liegen über diejenigen der Moleküle  $\text{Zn}_2$ ,  $\text{Cd}_2$  und vor allem  $\text{Hg}_2$  eine ganze Anzahl von Arbeiten vor (Übersicht über die ältere Literatur FI 38a, p. 193ff.). Über die Emissionsbanden des  $\text{Hg}_2$  gibt MROZOWSKI (MR 37a, MR 37b) eine gute Übersicht.

Um wenigstens für einen, wahrscheinlich recht ungünstigen Fall, eine numerische Abschätzung vorzunehmen, nehmen wir das  $\text{Hg}_2$ -Kontinuum in Emission mit dem Maximum bei  $\lambda = 4850$  Å, das nach MROZOWSKI einer Emission  $^3\text{O}_u \rightarrow 6\ ^1\text{S} + 6\ ^3\text{Po}$  [Nr. 1 seiner Nomenklatur, (FI 38a), p. 196, p. 204] entspricht.

Nehmen wir für dieses Spektrum  $\lambda_0 = 4850$  Å,  $\Delta\nu = 200$  Å und  $W_{21} \approx 10^{-3}$  Watt/cm<sup>3</sup> an, so ergibt sich  $A^- \sim 1,3 \cdot 10^8$  cm.

Es ist nicht das Ziel dieser Arbeit, die Plasmabedingungen im einzelnen zu diskutieren, die eine eventuelle Realisierung eines optischen *Masers* unter Ausnützung molekularer Zufallsspektren ermöglichen könnten, sondern lediglich auf die bisher anscheinend nicht beachtete Tatsache aufmerksam zu machen, dass für diese Spektren die *Maser*-Bedingung automatisch erfüllt ist. Im übrigen ist es nicht nötig, die Länge eines Entladungsrohres von der Größenordnung von  $A^-$  zu wählen, wenn dieses mit spiegelnden Wänden versehen wird, deren Reflexionsverlust kleiner ist als die durch negative Absorption bei einem Durchgang durch die Entladung gewonnene Verstärkung (PRO 58).

Für zahlreiche anregende Diskussionen über den Gegenstand dieser Arbeit danke ich in erster Linie W. PAULI, dessen Andenken diese Arbeit gewidmet ist, aber auch H. KOPFERMANN, K. KREBS, L. D. LANDAU, G. RUMER, R. ROMPE, R. JAECKEL, W. PAUL, W. FINKELNBURG, M. SCHÖN, H. FRIEDBURG, W. THIRRING, E. C. G. STÜCKELBERG und C. H. TOWNES. Herrn G. CVIJANOVICH danke ich für seine wertvolle Hilfe bei der Fertigstellung des Manuskripts.

## Literaturverzeichnis

- BA 31 H. BARTELS, *Z. Phys.* **73** 203 (1931).  
 BR 29 C. J. BRASEFIELD, *Phys. Rev.* **33**, 925 (1929).  
 E 11 A. Einstein *Ann. d. Physik.* **37**, 832, (1912). T. WEBER, *Rev. Mod. Phys.* **31** 681 (1959).  
 FI 38a W. FINKELNBURG, *Kontinuierliche Spektren* (Verlag J. Springer, Berlin 1938).  
 FI 38b W. FINKELNBURG und B. VOGEL, *Z. Phys.* **999** (1939).  
 HEI 54 W. HEITLER, *Quantum Theory of Radiation*, 3rd. ed. (1954).  
 HEN 32 H. J. HENNING, *Ann. Phys., Lpz.* (5) **13**, 599 (A8) (1932).  
 HER 27 G. HERZBERG, *Ann. Phys. Lpz.* (4) **84**, 553 (1927).  
 HO 30a J. J. HOPFIELD, *Phys. Rev.* **35**, 1133 (1930).  
 HO 30b J. J. HOPFIELD, *Phys. Rev.* **36** 784 (1930).  
 HU 31 Y. HUKUMOTO, *Phys. Rev.* **37**, 1552 (1931).  
 JO 32 P. JOHNSON, *Phil. Mag.* **13**, 487 (A98) (1932).  
 KU 32 H. KUHN, *Z. Phys.* **76** 782 (Na, K, Cs) (1932).  
 MC 32 S. P. McCALLUM, L. KLATZOW und J. E. KEYSTON, *Nature, London* **810** (A 98) (1932).  
 MC 33 S. P. McCALLUM, L. KLATZOW und J. E. KEYSTON, *Phil. Mag.* **76** 193 (A 98) (1933).  
 MI 34 A. MITCHELL und M. ZEMANSKY, *Resonance Radiation and Excited Atoms* (Cambridge University Press 1934).  
 MR 37a S. MROZOWSKI, *Z. Phys.* **104** 288 (1937).  
 MR 37b S. MROZOWSKI, *Z. Phys.* **106**, 458 (1937).  
 PL 65 J. PLÜCKER und J. W. HITTOFF, *Phil. Trans. roy. soc., London* **155**, 22 (1965).  
 PRO 58 A. M. PROKHOYOV, *JETP* **34**, 1658 (1958).  
 SP 31 R. C. SPENCER, *Phys. Rev.* **38**, 618 (1931).  
 SCH 58 SCHOWLOW und TOWNES, *Phys. Rev.* **112** 1940 (1958).  
 STE 36 G. STEENSHOLT, *Z. Phys.* **100**, 547 (1936).  
 TO 32 J. S. TOWNSEND und M. H. PAKKALA, *Phil. Mag.* **14**, 418 (A98) (1932).  
 WEI 31 W. WEIZEL, *Handbuch d. Exp. physik, Erg. Bd. I, Bandenspektren* (1931).  
 WI 28 J. G. WINAUS und STUECKELBERG, *Proc. nat. Acad. Amer.* **14**, 867 (1928).

## Forme et structure des raies de résonance magnétique dans les liquides aux très basses fréquences

par **G. J. Béné**

Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'Université de Genève

La résonance magnétique aux basses fréquences est étudiée au laboratoire de spectroscopie hertzienne de l'Université de Genève depuis l'automne 1954. En gros, le domaine étudié recouvre les bandes de fréquences:

150–60 kc/s pour la résonance électronique,

150–2 kc/s pour la résonance des noyaux.

Nous décrirons brièvement ci-dessous les principaux problèmes abordés et les résultats obtenus. Les travaux en cours seront également discutés et nous esquisserons les projets immédiats de notre groupe.

I. Effets de la modulation basse fréquence sur la forme des raies de résonance magnétique nucléaire. L'étude générale de ce phénomène requiert un pouvoir de résolution suffisant pour que la largeur de la raie en cycles soit petite par rapport à la fréquence de modulation. J. M. ROCARD a, en particulier, pu analyser de façon précise l'effet du «Lock in» sur la forme de la résonance.

Les effets limites de ce phénomène sont bien connus:

1. lorsque  $H_m$  (amplitude du champ de modulation)  $\ll \Delta H$  (largeur de raie) le lock-in permet d'observer la dérivée du signal de résonance. J. M. ROCARD a montré qu'une seconde condition est en outre nécessaire

$$\Omega \text{ (pulsation de la modulation)} \ll \gamma \Delta H$$

$\gamma$  rapport gyromagnétique du noyau étudié;  $\Delta H$  largeur de raie

2. Si au contraire, on a la relation  $\Omega \gg \gamma \Delta H$  on observe alors les fréquences latérales. Le nombre de termes observables aux fréquences  $\omega_0 \pm k\Omega$  ( $k$  entier,  $\omega_0$  = fréquence de Larmor), l'amplitude et la forme des résonances satellites, sont les solutions de l'équation classique de BLOCH:

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = (\gamma \mathbf{M} \Delta \mathbf{H}) - \frac{M_x}{T_2} - \frac{M_y}{T_2} - \frac{M_z - M_0}{T_1}$$

et dans ce cas, les composantes  $u$  (en phase avec la magnétisation) et  $v$  (composante en quadrature) sont des fonctions de la pulsation  $\Omega$  et s'expriment à l'aide des fonctions de Bessel d'argument  $\gamma H_m / \Omega$ .

3. Le cas intermédiaire  $\Omega \approx \gamma \Delta H$  a été étudié dans notre laboratoire, et J. M. ROCARD a montré que dans ce cas, (1) la courbe de résonance unique n'a plus l'allure d'une dérivée d'absorption ou de dispersion, mais



s'interprète comme courbe limite du cas précédent pour lequel les phases du champ haute fréquence  $\varphi$  et de la modulation  $\psi$  seraient identiques entre elles et en outre accordées avec celle de la magnétisation des noyaux. Ces cas sont schématisés ci-dessous :

- Fréquences latérales si  $\varphi = \psi = 0$  pour  $\Omega \gg \gamma \Delta H$  (courbe 1),
- résonance unique pour  $\Omega \cong \gamma \Delta H$  (courbe 2)
- courbe pour  $\Omega \ll \gamma \Delta H$  (courbe 3).

La courbe b) est de la forme  $z = -4x/(H + X^4)$  tandis que c)  $-2x/(1 + x^2)$  (dérivée d'absorption).

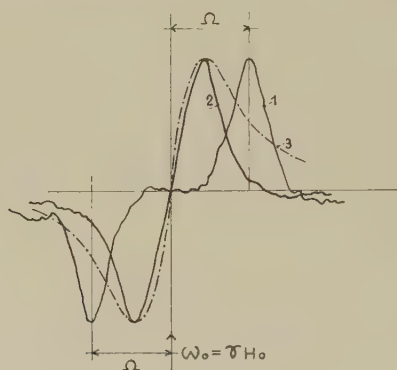


Fig. 1

II. Forme des raies de résonance lorsque les temps de relaxation sont de l'ordre de grandeur de la fréquence de Larmor – autrement dit lorsqu'on ne peut plus négliger l'absorption propre de relaxation.

Cet effet a été étudié en résonance magnétique électronique par R. BEELER sur des solutions de Na dans  $\text{NH}_3$  liquide. La largeur de raie étant de 20 mg, il a été nécessaire d'étudier cette résonance pour  $\omega_0 = 60$  kc/s.

C'est encore le système d'équations de Bloch qui permet d'étudier ce problème. Nous en modifions la formulation pour tenir compte des conditions expérimentales :

- $H_1 (HF) \approx H_0$  (champ principal)
- polarisation linéaire du champ  $H_1$
- comme il s'agit de liquides  $T_1 = T_2 = \tau$

on a alors le système :

$$\begin{aligned} \frac{dM_x}{dt} &= \gamma' M_y H_0 - \frac{(M_x - \chi_0 H_1 \cos \omega t)}{\tau} \\ \frac{dM_y}{dt} &= \gamma' M_z H_1 \cos \omega t - \gamma' M_x H_0 - \frac{M_y}{\tau} \\ \frac{dM_z}{dt} &= -\gamma' M_y H_1 \cos \omega t - \frac{(M_z - \chi_0 H_0)}{\tau} \end{aligned}$$

Nous n'écrirons pas les solutions, mais indiquons schématiquement l'évolution de la forme des courbes de dispersion et d'absorption lorsque  $\omega_0 \rightarrow 1/\tau$ . Non seulement R. BEELER a mis en évidence ces courbes, prévues depuis longtemps (2) mais il a analysé en détail l'influence de la puissance  $HF$  (intensité du champ  $H_1$ ) sur la forme de ces courbes (3).

Nous résumons ci-dessous les résultats obtenus:

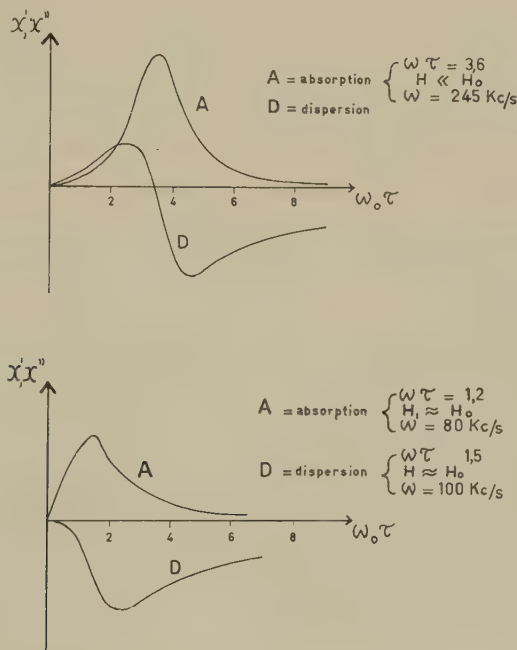


Fig. 2

Un tel effet est actuellement étudié sur la résonance magnétique nucléaire des protons en champ très faible  $H_0 \approx 2$  gauss.

III. L'étude de la forme des raies de résonance magnétique nucléaire des liquides diamagnétiques requiert un pouvoir de résolution élevé. En effet,

protons de l'eau distillée	$\Delta H = 18 \mu g$
protons du benzène pur	$\Delta H = \sim 3 \mu g$

Un tel pouvoir de résolution est actuellement inaccessible en champ élevé. Il a pu être réalisé par G. HOCHSTRASSER dans un dispositif fonctionnant exactement à la fréquence de résonance des protons dans le champ magnétique terrestre d'une région où ce champ n'est pas perturbé

par des champs parasites inhomogènes ou variables dans le temps (4). Le pouvoir de résolution a atteint  $0,1 \mu\text{g}$  et il a été possible, non seulement de mesurer pour la première fois la vraie largeur de raies très fines mais d'analyser avec précision la forme de ces raies pour des molécules de géométrie donnée. Les résultats obtenus seront rassemblés dans une thèse de doctorat à soutenir ces prochains mois.

IV. Les interactions indirectes des spins entre noyaux de nature différente sont souvent d'un ordre de grandeur assez faible ( $1400 - 1 \text{ c/s}$ ). L'emploi d'un champ extérieur assez faible permet d'éliminer l'effet du shift chimique interne qui complique les spectres. Tant que  $\Delta\omega_0 \gg J$  ( $\Delta\omega_0$  = différence des fréquences de Larmor des noyaux en interactions,  $J$  = constante d'interaction) on obtient l'analogie du phénomène observé en haute résolution, pour l'interaction indirecte de noyaux de même nature lorsque  $\delta \gg J$  (5).

Ceci a été vérifié par D. ROUX qui a étudié les interactions indirectes de  $H_1 - P_{31}$ ,  $H_1 - F_{19}$ ,  $F^{19} - P^{31}$  pour  $\gamma_0 \approx 150 - 50 \text{ kc/s}$ . Les effets de relaxation associés à ces interactions sont actuellement étudiés par les échos de spins dans les mêmes bandes de fréquences (A. CSÁKI).

Des interactions indirectes encore plus faibles peuvent être mises en évidence à de plus basses fréquences dans le champ magnétique terrestre. Une compensation des petites variations doit également permettre d'observer le shift interne dans les conditions non étudiées ou  $\delta \ll J$ .

Dans le même domaine de fréquences, la relation  $\Delta\omega_0 \gg J$  n'est pas satisfaite et on s'attend à une dissymétrie des signaux de résonance. Cet effet a été récemment observé par A. ERBEIA qui a pu en outre, grâce au pouvoir de résolution du dispositif, analyser les effets de relaxation dus à ces interactions indirectes ainsi qu'à des croisements de résonance magnétique nucléaire de noyaux de nature différente (6).

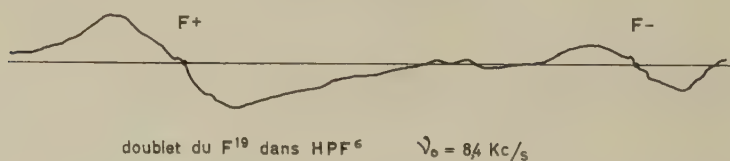


Fig. 3

### Références

- <sup>1</sup>) J. M. ROCARD, Arch. Sci. 9, 237-261 (1956).
- <sup>2</sup>) G. BÉNÉ et R. EXTERMANN, Arch. Sci. 4, 436 (1951).
- <sup>3</sup>) R. BEELER, Arch. Sci., Genève 10, 185-221 (1957).
- <sup>4</sup>) G. HOCHSTRASSER, G. BÉNÉ et R. EXTERMANN, C. R. Acad., Paris 248, 218-220 (1959).
- <sup>5</sup>) D. ROUX, Helv. phys. Acta 31, 511-541 (1958).
- <sup>6</sup>) A. ERBEIA et G. BÉNÉ, C. R. Acad. Sci., Paris 250, 3467-3469, (1960).

# Numerical Evaluation of the Pseudo-Tridents Production Cross-Section

by **C. Piron, M. Gailloud, Ph. Rosselet and M. Biasutti**

(Laboratoire de Recherches Nucléaires, E.P.U.L., Lausanne)

*Summary.* The number of apparent tridents produced by Bremsstrahlung has been calculated for arbitrary experimental conditions and  $E/mc^2 < 10^5$ .

## I. Introduction

Several authors have studied the direct production of electron pairs by charged particles in photographic emulsions and more recently in diffusion chambers. It is well known that, due to the finite resolution of the detector, pairs produced by conversion of Bremsstrahlung photons on the track of the primary particle are indistinguishable from direct pairs. The number of these spurious events (pseudo-tridents) can be evaluated in a semi empirical way from the number of pairs observed within a given distance to the track<sup>1-3</sup>). This procedure implies the knowledge of the theoretical distribution of the pairs, and of the scanning efficiency as a function of the distance to the primary track; it is therefore subject to a serious experimental bias. In this work, the number of pseudo-tridents per unit length has been calculated in a completely theoretical way from the known radiation and materialization cross-sections, using the spatial distribution function of multiple Coulomb scattering given by Rossi<sup>4</sup>).

## 2. Derivation of the general formula for the number of pseudo-tridents

Let us consider a particle of charge  $e$ , mass  $m$  and energy  $E$  moving in a given medium. Let  $n_f$  be the number of Bremsstrahlung pairs produced per unit length inside a tube of radius  $\varrho$  around the trajectory.  $n_f$  is a constant at sufficiently large distances from the boundaries of the medium, that is as soon as the mean square lateral displacement  $\sigma$  due to the multiple Coulomb scattering is larger than  $\varrho^5$  \*). We have then:

$$n_f = \int_{\frac{2}{m_e c^2}}^E \sum_b (k) dk \int_{\vartheta}^{\pi} \sum_b (E, k, \theta) d\theta \int_{C(\vartheta, \varrho)} \int dy dz \frac{1}{\pi} \frac{1}{\sigma^2} e^{-\frac{y^2 + z^2}{\sigma^2}} d\theta \quad (1)$$

where

$$\sum_b (E, k, \theta) dk d\theta$$

\*) This can be seen in Figure 5 of reference <sup>5</sup>) for a particular case.

is the macroscopic radiation cross-section, differential in photon energy  $k$  and emission angle  $\theta$ .  $\theta$  is the angle between the emitted photon and the outgoing particle.

$\Sigma_p(k)$  is the total macroscopic cross-section for the conversion of a photon of energy  $k$ .

$$\sigma^2 = \frac{D^2 \cdot l^3}{X_0 (E - k)^2}$$

$X_0$  is the radiation length of the medium;  $D$  is a constant ( $3 D^2 = E_s^2$  as in equation (7) page 68 of reference <sup>4</sup>).

The notation  $C(l\theta, \varrho)$  means that the integration with respect to  $y$  and  $z$  is carried out in a circle of radius  $\varrho$  centered at a distance  $l\theta$  from the tangent to the trajectory (Fig. 1).

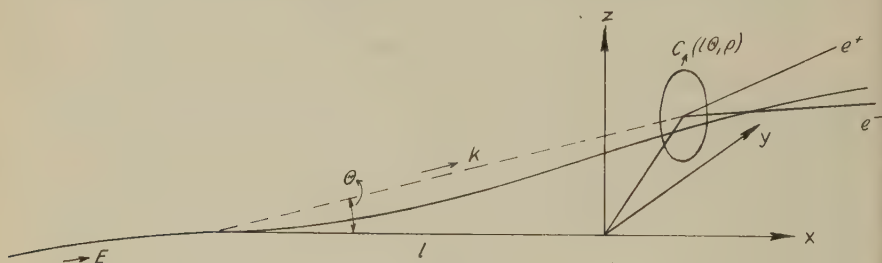


Fig. 1

For useful values of  $\varrho$ , the average distance between the emission and the conversion of a photon is small compared to  $X_0$ , as will be verified later on. We have therefore neglected, in equation (1), the energy loss of the particle over the distance  $l$ .

The angular distribution of the radiated photons is given by a hardly workable expression which can be written, with a good approximation, as a function of  $\theta_0 E/mc^2$  where  $\theta_0$  is the angle between the initial particle and the photon<sup>6</sup>). The symmetry under time reversal allows us to write it as a function of  $\tau = \theta (E - k)/mc^2$ :

$$\sum_b (E, k, \theta) d\theta \cong \sum_b (E, k) dn \left( \frac{\theta (E - k)}{mc^2} \right)$$

where  $dn$  is the fraction of the photons of energy  $k$  emitted in the elementary solid angle  $2\pi \sin\theta d\theta$  and

$$\sum_b (E, k) = \left( \frac{m_e}{m} \right)^2 \frac{1}{X_0} \frac{dk}{k} \quad (2)$$

Substituting in equation (1) we get

$$n_f = \int_k \sum_p (k) dk \cdot \sum_b (E, k) \cdot \bar{l} (E - k, \varrho, m, X_0, D^2) \quad (3)$$

with

$$\bar{l} = \int_l dl \int_{\theta} dn \left( \frac{\theta (E - k)}{mc^2} \right) \iint_{C(l\theta, \varrho)} dy dz \frac{1}{\pi} \frac{X_0 (E - k)^2}{D^2 \cdot l^3} e^{-\frac{(y^2 + z^2) X_0 (E - k)^2}{D^2 l^4}} \quad (4)$$



### 3. Computation of $\bar{l}$

$\bar{l}$  is the average path length of the photons converted inside the tube of radius  $\rho$ .  $\bar{l}$  depends on many parameters, but we can substitute for it a function depending explicitly on one variable only. Defining:

$$g = l \frac{D^2}{(mc^2)^2} \frac{1}{X_0}, \quad \bar{g} = \bar{l} \frac{D^2}{(mc^2)^2} \frac{1}{X_0}$$

$$r'_y = y \frac{(E-k) D^2}{(mc^2)^3 X_0}, \quad r'_z = z \frac{(E-k) D^2}{(mc^2)^3 X_0}, \quad r = \rho \frac{(E-k) D^2}{(mc^2)^3 X_0} \quad (5)$$

and noting that

$$\frac{(y^2 + z^2) X_0 (E-k)^2}{D^2 l^3} = \frac{r'^2}{g^3}$$

and

$$\frac{l \theta (E-k) D^2}{(mc^2)^3 \cdot X_0} = g \tau$$

equation (4) becomes

$$\bar{g} = \int_g dg \int_{\tau} d\tau \int_{C(g, \tau)} \iint dr'_y dr'_z \frac{1}{\pi} \frac{1}{g^3} e^{-\frac{r'^2}{g^3}} \quad (6)$$

The dimensionless function  $\bar{g}$  is independent of the medium, the mass and the energy of the particle, but depends only on the parameter  $r$ .

For the actual computation of  $\bar{g}(r)$ , we took for  $dn(\tau)$  the values calculated by KOCH and MOTZ<sup>6)</sup> for 300 MeV electrons and for  $k/E = 0,3$  (based on the Schiff differential cross-section). These values were then normalized to unity.

The numerical integrations were performed on the Zebra electronic computer of the E. P. U. L.\*). To simplify, the circle  $C(g\tau, r)$  was replaced first by a square of the same center, of sides  $2r$  parallel to the axes (Fig. 2), then by this same square rotated by  $45^\circ$  around its center. As

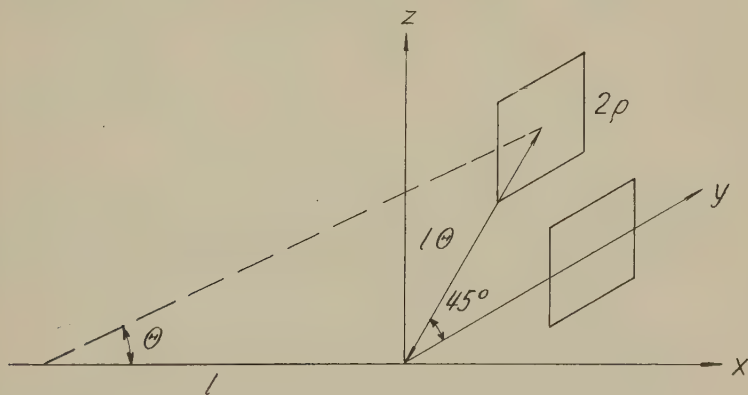


Fig. 2

shown in Table I, the results for the 2 domains of integration never differ by more than 6%. In Figure 3, the average of the 2 values of  $\bar{g}$  has been plotted as a function of  $r$ .

\*) We thank Prof. BLANC and Mr. RAPIN for their collaboration.

Table I

$r$	$\bar{g}$	$\bar{g}_{45}$	$\bar{g}$
0.5	0.504	0.636	0.615
1.0	1.082	1.153	1.117
1.5	1.531	1.623	1.577
2.0	1.955	2.075	2.015
3.0	2.754	2.902	2.828
4.0	3.506	3.674	3.590
6.0	4.913	5.110	5.011
8.0	6.231	6.446	6.338
10.0	7.477	7.703	7.590
15.0	10.59	10.62	10.50
20.0	13.07	13.30	13.19
30.0	17.93	18.16	18.05
50.0	26.43	26.63	26.53
100.0	43.99	44.15	44.07
150.0	58.80	58.94	58.87
200.0	72.07	72.19	72.13
300.0	95.08	95.78	95.73



Fig. 3

This represents  $\bar{g}$  as a function of  $r$ . The numbers on both scales have to be multiplied by 10 for curve 2, by 100 for curve 3.  $\bar{g}$  and  $r$  are dimensionless quantities.

#### 4. Evaluation of the number of pseudo-tridents

Coming back to the physical problem of determining the number of pseudo-tridents produced along the track of a particle, we have to take for  $\varrho$  a value depending on the radius of the track and such that a pair created within the distance  $\varrho$  cannot be distinguished from a direct pair. In photographic emulsions as well as in hydrogen diffusion chambers, the ratio  $\varrho/X_0$  is about  $10^{-5}$ . Since  $\bar{g}$  is of the same order of magnitude as  $r$  (Fig. 3), one has

$$\frac{\bar{l}}{X_0} = \frac{(mc^2)^2}{D^2} \cdot \bar{g} \approx \frac{E-k}{mc^2} \cdot \frac{\varrho}{X_0} \approx 10^{-5} \cdot \frac{E-k}{mc^2}.$$

Therefore the hypothesis  $l < X_0$  is verified for  $E/mc^2 < 10^5$  \*).

We still have to give the expression used for  $\Sigma_p(k)$  in equation (3). Four different regions must be considered:

$\alpha$ )  $2 m_e c^2 < k < 20 m_e c^2$ : the contribution to the integral can be neglected, since pairs of energy lower than 10 MeV are hardly detectable because of their large opening angle.

$\beta$ )  $2 m_e c^2 \ll k < 137 m_e c^2 \cdot Z^{-1/3}$  (no screening): equation (9) page 81 of reference 4).

$\gamma$ )  $k \sim 137 \cdot m_e c^2 \cdot Z^{-1/3}$  (partial screening):  $\Sigma_p$  is given numerically by BETHE and HEITLER<sup>8</sup>).

$\delta$ )  $k \gg 137 \cdot m_e c^2 \cdot Z^{-1/3}$  (complete screening): equation (10) page 81 of reference 4).

In order to be able to integrate analytically, we have used the following expression for  $\Sigma_p$ :

$$\Sigma_p = \frac{1}{X_0 \ln(183 Z^{-1/3})} \left( \frac{7}{9} \ln \frac{2k}{m_e c^2} - \frac{109}{54} \right) \quad \text{for } k \leq k_0^{**})$$

$$\Sigma_p = \frac{1}{X_0 \ln(183 Z^{-1/3})} \left( \frac{7}{9} \left[ \ln(183 Z^{-1/3}) - 2 \left( \frac{k_0}{k} \right)^{1/2} \right] - \frac{1}{54} \right) \quad \text{for } k \geq k_0$$

with

$$k_0 = \frac{1}{2} e^{\frac{4}{7}} \cdot 183 Z^{-1/3} \cdot m_e c^2. \quad (7)$$

For the integration over  $k$ ,  $\bar{g}(r)$  is approximated by a linear function fitting the curve in the upper part of the domain of integration, this part giving the major contribution to the integral

$$\bar{g}(r) = \left[ (1 + \varepsilon) \left( 1 - \frac{k}{E} \right) + \zeta \frac{k}{E} \right] \bar{g}(r_{\max}) \quad (8)$$

where

$$r_{\max} = r(k=0) = \frac{\varrho}{X_0} \cdot \frac{D^2 E}{(mc^2)^3}.$$

\*) The number of pseudo-tridents produced by electrons in photographic emulsion has been calculated by TUMANYAN *et al.*<sup>7</sup>) by a Monte Carlo Method, for few values of  $\varrho$  and for  $E = 10^4, 10^5$  and  $10^6$  MeV.

\*\*) This expression is obviously not valid for  $k < 10 m_e c^2$ , but one can verify that its contribution to the integral (9) from 2 to  $20 m_e c^2$  cancels out almost exactly.

Taking (2), (4), (6) and (8) into account, equation (3) becomes

$$\begin{aligned}
 n_f = & \int_k \sum_p(k) \left( \frac{m_e}{m} \right)^2 \frac{1}{X_0} \frac{dk}{k} \frac{(mc^2)^2}{D^2} X_0 \left[ (1 + \varepsilon) \left( 1 - \frac{k}{E} \right) + \right. \\
 & + \zeta \frac{k}{E} \left. \right] \bar{g}(r_{\max}) = \frac{(m_e c^2)^2}{D^2} \left[ (1 + \varepsilon) \int_{2 m_e c^2}^E \sum_p(k) \left( \frac{1}{k} - \frac{1}{E} \right) dk + \right. \\
 & + \zeta \int_{2 m_e c^2}^E \sum_p(k) \frac{dk}{E} \left. \right] \cdot \bar{g}(r_{\max}) = \\
 & = \frac{1}{X_0} \frac{(m_e c^2)^2}{D^2} \left[ (1 + \varepsilon) P(E, Z) + \zeta \cdot P_1(E, Z) \right] \bar{g}(r_{\max}). \quad (9)
 \end{aligned}$$

Introducing (7) and carrying out the integration yields for  $E > k_0$ :

$$\begin{aligned}
 P(E, Z) = & \left( \frac{7}{9} - \frac{1}{54} \frac{1}{\ln(183 Z^{-1/3})} \right) \ln \frac{E}{2 m_e c^2} + \\
 & + \frac{1}{\ln(183 Z^{-1/3})} \cdot \frac{28}{9} e^{\frac{2}{7}} \cdot (183 Z^{-1/3})^{1/2} \left( \frac{2 m_e c^2}{E} \right)^{1/2} - \\
 & - \frac{1}{\ln(183 Z^{-1/3})} \left( \frac{151}{54} - \frac{7}{9} \ln 4 + \frac{7}{36} e^{\frac{4}{7}} 183 Z^{-1/3} \right) \frac{2 m_e c^2}{E} - \\
 & - \frac{7}{18} \ln(183 Z^{-1/3}) - \left( \frac{1553}{378} - 2 \ln 4 + \frac{7}{18} \ln^2 4 \right) \frac{1}{\ln(183 Z^{-1/3})} - \\
 & - \frac{25}{9} + \frac{7}{9} \ln 4. \quad (10)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 P_1(E, Z) = & \frac{-1}{\ln(183 Z^{-1/3})} \cdot \frac{14}{9} \cdot e^{\frac{2}{7}} \cdot (183 Z^{-1/3})^{1/2} \cdot \left( \frac{2 m_e c^2}{E} \right)^{1/2} + \\
 & + \frac{1}{\ln(183 Z^{-1/3})} \left( \frac{151}{54} - \frac{7}{9} \ln 4 + \frac{7}{36} \cdot e^{\frac{4}{7}} \cdot 183 Z^{-1/3} \right) \frac{2 m_e c^2}{E} - \\
 & - \frac{1}{\ln(183 Z^{-1/3})} \cdot \frac{1}{54} + \frac{7}{9}. \quad (11)
 \end{aligned}$$

$P$  and  $P_1$  are plotted on Figure 4 as functions of  $E$ , for different values of  $Z$ .

One can get a crude approximation of  $n_f$  by taking  $\varepsilon = \zeta = 0$ , or

$$n_f \cong \frac{1}{X_0} \frac{(m_e c^2)^2}{D^2} \cdot P(E, Z) \cdot \bar{g}(r_{\max}). \quad (12)$$

For a better approximation, equation (9) should be used, with  $\varepsilon$  and  $\zeta$  estimated from Figure (3). One sees easily from this Figure that  $\varepsilon \approx 0.02$  and  $\zeta \approx 0.1$  for most values of  $r_{\max}$  (or  $E$ ).

## 6. Applications

Consider for instance the case of 1 GeV electrons in photographic emulsion (Ilford G5). We take the following values for the parameters of the medium:

$$\varrho = 0.3 \mu\text{m}; \quad X_0 = 2.99 \text{ cm}; \quad D = 11 \text{ MeV*}.$$

\*) This value has been determined experimentally for 380 MeV electrons.

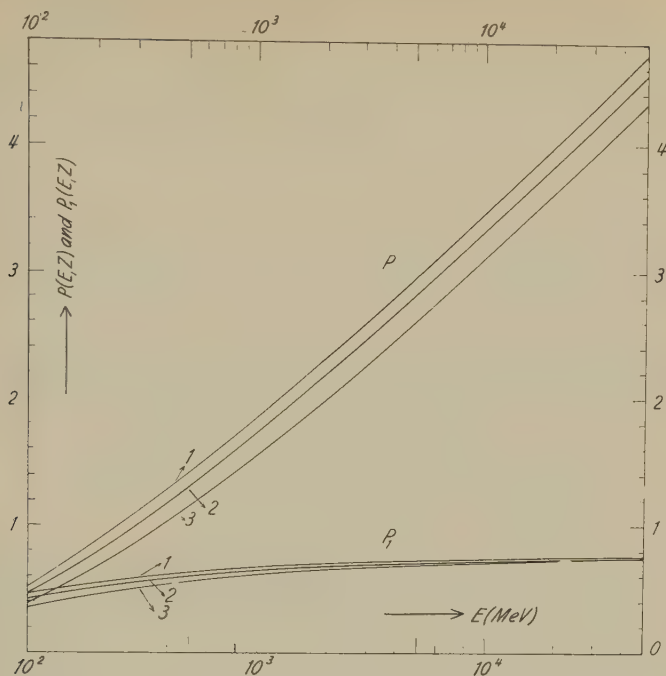


Fig. 4 This figure represents  $P$  and  $P_1$  as functions of  $E$ , for  $Z = 82$  (curve 1),  $Z = 13$  (curve 2), and  $Z = 1$  (curve 3)

From Figure 3 and 4:

$$\bar{g}(r_{\max}) = 7.05 \quad (r_{\max} = 9.1); \quad P = 1.76; \quad P_1 = 0.66;$$

admitting:  $\varepsilon = 0$ ;  $\zeta = 0.12$ , we have finally:  $n_f = 9.1 \cdot 10^{-3}$  pseudo-trident per cm.

This number is to be compared with the theoretical production rate of true tridents  $n_v$ . In Table 2, the ratio  $n_f/n_f + n_v$  is given for various energies,  $n_v$  being calculated after BLOCK *et al.*<sup>9)</sup>.

Table 2

$E(\text{MeV})$	$n_v \text{ (cm}^{-1}\text{)}$	$n_f \text{ (cm}^{-1}\text{)}$	$\frac{n_f}{n_f + n_v}$
100	1.84 $10^{-3}$	0.35 $10^{-3}$	0.16
400	5.1 $10^{-3}$	2.9 $10^{-3}$	0.36
700	7.2 $10^{-3}$	5.9 $10^{-3}$	0.45
1000	8.8 $10^{-3}$	9.1 $10^{-3}$	0.51
1400	10.5 $10^{-3}$	13.2 $10^{-3}$	0.56
1700	11.5 $10^{-3}$	16.4 $10^{-3}$	0.59
2000	12.5 $10^{-3}$	20.0 $10^{-3}$	0.62



These results are correct at distances larger than 500 microns from the entrance in the emulsion (see § 2).

For  $\mu$ -mesons of same velocity ( $E/m_\mu c^2 = 2 \cdot 10^3$ ),  $r$  becomes  $(m_e/m_\mu)^2$  times smaller, whereas the direct pair production cross-section remains unchanged. The proportion of pseudo-tridents is now completely negligible.

In a hydrogen diffusion chamber (pressure of 20 atmospheres), we have approximatively:  $\varrho = 0.01$  cm;  $X_0 = 4 \cdot 10^4$  cm;  $D = 11$  MeV.

For 1 GeV electrons, we find:  $\bar{g}(r_{\max}) = 0.31$ ; ( $r_{\max} = 0.24$ );  $P = 1.58$ ; and by the approximation (12):  $n_f = 0.28 \cdot 10^{-7}$  pseudo-trident per cm, to compare with  $n_p = 2.6 \cdot 10^{-7}$  direct pair per cm. In this case, the asymptotic value  $n_f$  is reached at about 30 cm from the walls.

The above computation can be applied to determine the radial distribution of the Bremsstrahlung pairs around the trajectory of the primary particle. In equation (9), only  $\bar{g}$  depends on the radial distance  $\varrho$ ; therefore the shape of the distribution is given by the derivative  $d\bar{g}/d\varrho$ , which is approximately a constant (see Figure 3).

One can also apply this computation to the direct pair production by a charged particle in a thin target. A 'trident' is observed as a triplet of collimated tracks at the exit of the target. In this case, any pair produced in the target by a Bremsstrahlung photon constitutes a pseudo-trident. The total number of these events in a target of thickness  $a \ll X_0$  is:

$$N_p = \int_{2m_e c^2}^E dk \int_0^a dt (a-t) \sum_p(k) \sum_b(E, k) = \frac{a^2}{2} \int_{2m_e c^2}^E dk \sum_p \sum_b = \left\{ \begin{aligned} &= \frac{a^2}{2} \frac{1}{X_0^2} \left( \frac{m_e}{m} \right)^2 [P(E, Z) + P_1(E, Z)] \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

whereas the number of direct pairs is  $N_p = an_p$ . With 1 GeV electrons in an aluminium target ( $X_0 \cong 9$  cm), we have for instance  $N_p/N_v = 0.1$  for  $a \cong 200$   $\mu$ m.

We thank Prof. CH. HAENNY for his continuous encouragement. This work was supported by the Commission for Atomic Science of the Swiss National Fund.

### Bibliography

- <sup>1)</sup> M. BLOCK and D. T. KING, Phys. Rev. *95*, 171 (1954).
- <sup>2)</sup> M. KOSHIBA and M. F. KAPLON, Phys. Rev. *97*, 193 (1955).
- <sup>3)</sup> F. J. LOEFFLER, Phys. Rev. *108*, 1058 (1957).
- <sup>4)</sup> B. ROSSI, High-Energy Particles, Prentice-Hall (1952).
- <sup>5)</sup> R. WEILL, M. GAILLOUD and PH. ROSSELET, Nuovo Cimento *6*, 1430 (1957).
- <sup>6)</sup> H. W. KOCH and J. W. MOTZ, Rev. Mod. Phys. *31*, 920 (1959).
- <sup>7)</sup> V. A. TUMANYAN, V. A. ZHARKOV and G. S. STOLYAROVA, Dokl. Akad. Nauk SSSR. *122*, 208 (1958).
- <sup>8)</sup> H. BETHE and W. HEITLER, Proc. Roy. Soc. *A146*, 83 (1934).
- <sup>9)</sup> M. M. BLOCK, D. T. KING and W. W. WADA, Phys. Rev. *96*, 1627 (1954).

## Compte rendu de la Réunion de la Société Suisse de Physique

dans le cadre de la 140e assemblée annuelle de la Société  
Helvétique des Sciences Naturelles à Aarau, le 24 septembre 1960

Président: Prof. Dr. H. Staub (Zürich)

Secrétaire: Prof. Dr. B. VITTOZ (Lausanne)

### Partie Administrative

Sont reçus membres ordinaires: Mademoiselle V. MEYER (Zürich),  
Messieurs: J.-P. AMIET (Bonn), W. BIRRER (Olten), G. EMCH (Genève),  
R. GALLI (Basel), J. GUGGENHEIM (Zürich), M. RISI (Zürich), M. SPYCHER  
(Basel), H. THOMAS (Zürich), P. WYDER (Zürich), M. ZIEGENHAGEN (Lau-  
sanne).

Il est d'autre part décidé que la réunion de printemps 1961 se déroulera  
du vendredi au samedi et comprendra deux grands exposés.

## Sur la théorie des bandes d'énergie pour les métaux de transition de la première période

par R. EHRAT et D. RIVIER

(Lausanne, Laboratoire de Physique, Université)

1. Si l'application de la théorie des bandes d'énergie aux métaux de transition a rencontré de sérieuses difficultés, elle a aussi connu des réussites incontestables<sup>1)</sup>. C'est ainsi que l'idée de construire un modèle général de la bande 3d, valable pour l'ensemble des éléments de transition de la 1ère période, du scandium au nickel, a rencontré un certain succès<sup>2)</sup><sup>3)</sup>. En 1936 déjà, SLATER<sup>4)</sup> donnait pour la bande 3d une évaluation de la densité des états électroniques

$$\mathfrak{N}(\varepsilon) = \frac{1}{4\pi^3} \frac{d}{d\varepsilon} \int^k (dk)^3 \quad (1)$$

en fonction de l'énergie de l'électron. Dans (1),  $k = |\mathbf{k}|$ , où  $\mathbf{k}$  est le vecteur lieu dans l'espace réciproque. Plus récemment, SLATER et KOSTER<sup>5)</sup> pour le réseau cubique à maille centrée, KOSTER<sup>6)</sup> pour le même réseau mais à face centrée, ont calculé en détail la fonction  $\mathfrak{N}_d(\varepsilon)$ . La figure 1 donne une représentation de ces fonctions pour une demi-bande 3d.

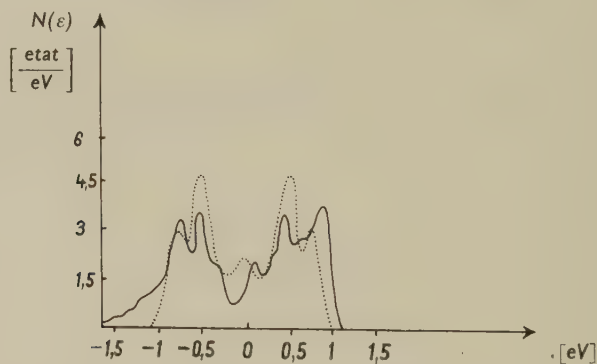


Fig. 1

Densités d'états en fonction de l'énergie dans une demi-bande 3d  
Réseau cubique face centrée (—), maille centrée (.....).

Si, compte tenu des approximations nécessaires au calcul, les détails des fonctions  $\mathfrak{N}_d$  doivent être considérés avec réserve, les points suivants semblent théoriquement bien fondés<sup>1)</sup>:

- I. La largeur de la bande 3d est de 3 eV environ;
- II. les fonctions  $\mathfrak{N}_d(\varepsilon)$  possèdent un minimum au milieu de la bande;
- III. la bande 3d est entièrement située à l'intérieur de la bande 4s et bien à l'extérieur de la bande 4p;
- IV. si  $\overline{\mathfrak{N}}_d$  et  $\overline{\mathfrak{N}}_s$  désignent les valeurs moyennes de  $\mathfrak{N}_d(\varepsilon)$  et de  $\mathfrak{N}_s(\varepsilon)$  prises sur la bande correspondante d ou s, on a

$$\overline{\mathfrak{N}}_d / \overline{\mathfrak{N}}_s \approx 20 \quad (2)$$

2. Parmi les possibilités de vérification expérimentale du modèle de bandes, et notamment de la fonction  $\mathfrak{N}_d(\varepsilon)$ , la plus directe et la plus sûre est offerte par la mesure de la constante de la chaleur spécifique (à volume constant) électronique «molaire» Dans le cas particulier des métaux de transition de la 1ère période, cette constante est donnée par

$$\gamma_V^{at} = \frac{C_V^{at}}{T} = \frac{\pi^2}{3} \frac{Rk_B}{n_{at}} [\mathfrak{N}_d(\varepsilon_F) + \mathfrak{N}_s(\varepsilon_F)] \quad (3)$$

où  $R$  est la constante des gaz parfaits,  $k_B$  la constante de Boltzmann,  $n_{at}$  le nombre d'atomes par unité de volume et  $\varepsilon_F$  l'énergie de Fermi à 0° K. Compte tenu de (2), et du fait que pour les métaux de transition de la 1ère période  $n_{at}$  varie seulement de quelques pourcents, on a simplement (en 1ère approximation)

$$\gamma_V^{at} = \text{Constante} \cdot \mathfrak{N}_d(\varepsilon_F) \quad (4)$$

Tandis que jusqu'à ces dernières années on manquait de résultats expérimentaux, la collation – à ce jour possible – de mesures récemment effectuées par divers auteurs<sup>7)</sup> nous a permis de tracer la figure 2 où  $\gamma_V^{at}$  est donnée en fonction du nombre  $Z$  d'électrons par atome, du chrome au cuivre en passant par une série d'alliages intermédiaires.

Or, dans la mesure où le modèle général de la bande 3d est valable pour les éléments, et dans la mesure où sa validité s'étend aux alliages intermédiaires (selon l'approximation dite «de la bande rigide»<sup>8)</sup>  $\varepsilon_F$  est une fonction monotone croissante de  $Z$ , de sorte que les fonctions  $\gamma_V^{at}(Z)$  et  $\gamma_V^{at}(\varepsilon_F)$  peuvent se déduire l'une de l'autre par un changement d'unité des abscisses (ce rapport des unités  $d\varepsilon_F/dZ$  variant localement avec  $Z$ ).

Cela signifie que, à des détails près, la courbe expérimentale de la figure 2 devrait, une fois effectué le changement d'unité, coïncider avec celle donnant  $\mathfrak{N}_d(Z)$  et que l'on peut théoriquement déduire de la figure 1, à la condition de tenir compte d'une part de la structure cristalline et d'autre part, pour les métaux ferromagnétiques, du décalage entre les deux demi-bandes 3d. Les incertitudes sur ce dernier facteur

ne permettent pas de donner plus que l'allure de la courbe, donnée sur la figure 3.

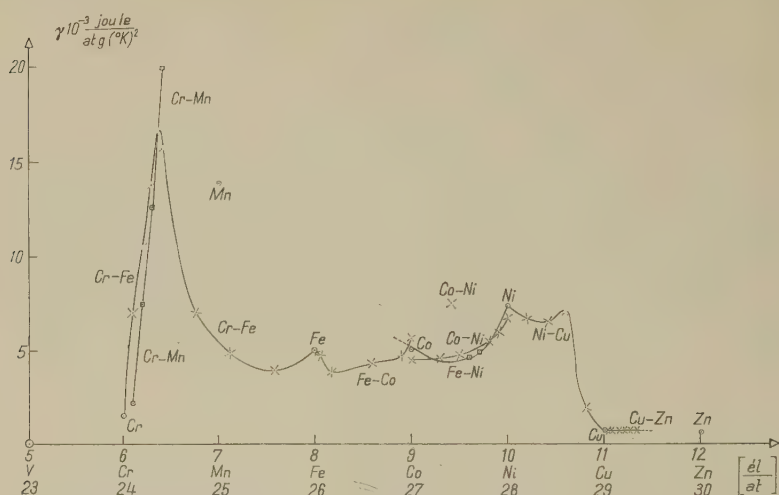


Fig. 2

Constante  $\gamma_V^{at}$  de la chaleur spécifique électronique:  
métaux et alliages de transition

#### Références

- Cr-Mn: WEI, CHENG, BECK (1959).  
 Cr-Fe: WEI, CHENG, BECK (1959); HOARE, MATTHEWS (1958).  
 Fe-Co: ARP, EDMONDS, PETERSEN (1959).  
 Fe-Ni: KEESOM, KURRELMMEYER (1940).  
 Co-Ni: WALLING, BUNN (1959); ARP, EDMONDS, PETERSEN (1959).  
 Ni-Cu: KEESOM, KURRELMMEYER (1940); GUTHRIE, FRIEDBERG, GOLDMAN (1959).  
 Cu-Zn: RAYNE (1957); HOVI et MANSIKKA (1959).  
 Métaux purs: KEESOM et PEARLMAN (1956).

3. Dans l'intervalle considéré, la comparaison entre les figures 2 et 3 appelle les deux remarques suivantes:

I. *L'allure générale* des deux courbes diffère. La courbe théorique de la figure 3 pour  $\mathfrak{N}_d(Z)$  révèle 2 maxima, l'un à droite, l'autre à gauche, tandis que la courbe expérimentale donne un maximum très accentué sur la gauche (pour un alliage Cr-Mn).

II. *La structure fine* de la courbe expérimentale de la figure 2 révèle des pics caractérisés aux points correspondants aux valeurs entières de  $Z$ . De tels pics ne sauraient trouver d'explication dans le cadre offert par le modèle de la bande rigide.

Il est d'ailleurs important de mentionner ici les résultats obtenus récemment par divers auteurs<sup>11)</sup> qui ont étudié la constante ordinaire



de Hall,  $R_0$ , en fonction du nombre  $Z$  dans le même domaine des métaux de transition. Les résultats peuvent être groupés dans la *figure 4*, donnant  $R_0$  en fonction de  $Z$ .

On le voit, cette figure fait apparaître aussi des pics aux points correspondant à des valeurs entières de  $Z$ . Bien qu'à ce jour les théories conduisant à des expressions de  $R_0$  soient trop rudimentaires pour conduire à des conclusions de portée générale sur le modèle de bandes d'énergie, il est peu douteux que les pics de la courbe  $R_0(Z)$  soient étrangers à l'approximation de la bande rigide.

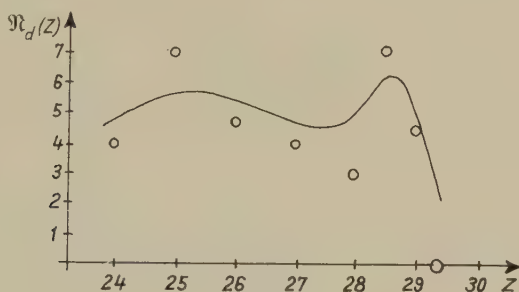


Fig. 3

Densités des états pour les éléments d'après les courbes de KOSTER, SLATER, en faisant intervenir les décalages des  $1/2$  bandes  $d$

4. En conclusion, les mesures récentes de chaleur spécifique électronique  $\gamma$  et de constante ordinaire de Hall  $R_0$  en fonction de  $Z$  semblent mettre en question le modèle général de bandes pour les métaux de transition, et notamment l'approximation dite de la bande rigide. Il n'est toutefois pas exclu que de meilleures approximations de la théorie de bande rétablisse l'accord avec l'expérience. En ce qui concerne *l'allure générale*, cela pourrait s'obtenir en évaluant de manière plus précise le *décalage des  $1/2$  bandes  $d$  ferromagnétiques*. Pour ce qui est *des pics de  $\gamma$  et de  $R_0$*  on sait déjà que des approximations non linéaires, notamment de *l'effet d'écran de charge*, diminuent la valeur de  $N_d(\epsilon)$  d'un alliage par rapport à celle du métal pur<sup>8) 10)</sup>.

En tout état de cause, il semble très souhaitable d'étendre les mesures de chaleur spécifique électronique et de constante de Hall ordinaire à la totalité des métaux de transition de la 1ère période ainsi qu'à leurs alliages, avec la condition essentielle de les faire porter *sur le même échantillon*.

Les auteurs remercient les Dr BERGER et DE VROOMEN d'intéressantes discussions, et le Fonds National de la Recherche Scientifique de son aide matérielle.

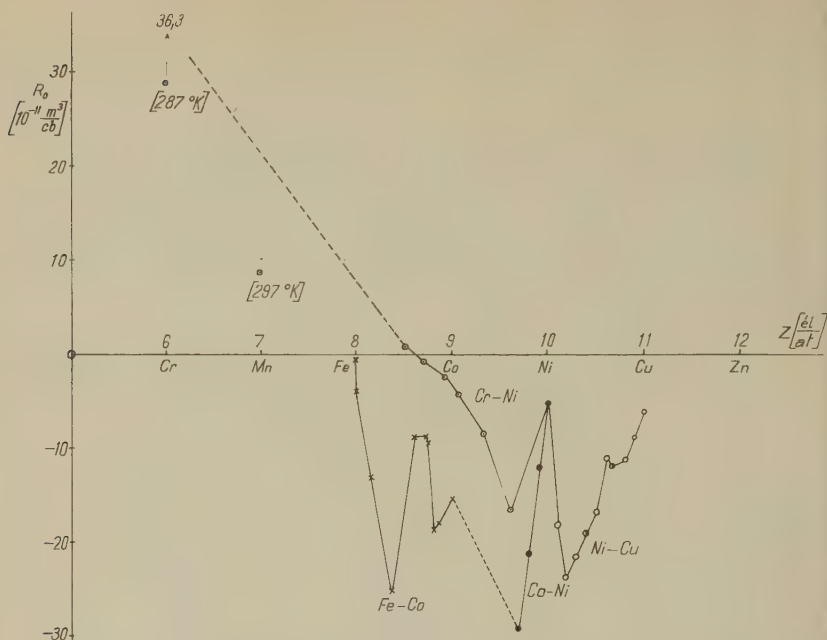


Fig. 4

La Constante ordinaire de Hall,  $R_0$ , en fonction du nombre  $Z$  d'électrons par atome

#### Références

- à 77° K, BEITEL et PUGH (1958).  
 20° K, SMIT (1956).  
 20° K, } COHEN (1955).  
 14° K, }  
 297° K, KÖSTER et ROCHOLL (1957).

#### Bibliographie

- <sup>1)</sup> J. CALLAWAY, Sol. State Physics 7, 99 (1958).
- <sup>2)</sup> N. F. MOTT, Proc. Phys. Soc. (London) 47, 571 (1931); A62, 416 (1949).
- <sup>3)</sup> L. PAULING, Phys. Rev. 54, 899 (1938); Proc. Natl. Acad. Sci. 39, 551 (1953).
- <sup>4)</sup> J. C. SLATER, Phys. Rev. 49, 537 (1936).
- <sup>5)</sup> SLATER et KOSTER, Phys. Rev. 94, 1498 (1954).
- <sup>6)</sup> KOSTER, Phys. Rev. 98, 901 (1955).
- <sup>7)</sup> WEI, CHENG, BECK, Phys. Rev. Letters 2, 95 (1959); WEI, CHENG, BECK, Phys. Rev. Let. 2, 95 (1959); HOARE, MATTHEWS, Proc. Phys. Soc. 71, 220 (1958); ARP, EDMONDS, PETERSEN, Phys. Rev. Let. 3, 212 (1959); KEESOM, KURRELMAYER, Comm. Kam. Onnes No. 260d (1940); WALLING, BUNN, Proc. Phys. Soc. 74, 417 (1959); ARP, EDMONDS, PETERSEN, Phys. Rev. Let. 3, 212 (1959); KEESOM, KURRELMAYER, Comm. Kam. Onnes n° 260d (1940); GUTHRIE,

FRIEDBERG, GOLDMAN, *Phys. Rev.* **113**, 45 (1959); RAYNE, *Phys. Rev.* **108**, 22 (1957); HOVI et MANSIKKA, 1959, IIR, Copenhagen; KEESOM et PEARLMAN, *Handbuch d. Physik*, Vol. XIV (1956).

<sup>8)</sup> FRIEDEL, *Nuov. Cim. Suppl.* **VII** (2), 287 (1958).

<sup>9)</sup> BEITEL et PUGH, *Phys. Rev.* **112**, (1958); SMIT, thèse, Leiden (1956); COHEN, thèse, MIT, Boston (1955); KÖSTER et ROCHOLL, *Z. Metallkunde* **48** (1957).

<sup>10)</sup> PARMENTER, *Phys. Rev.* **97**, 587 (1955); *ibid.* **104**, 22 (1956).

## Über den Bindungs- und Leitungscharakter von Verbindungen mit $\text{CdJ}_2$ -Struktur

VON F. HULLIGER

(Laboratorium für Festkörperphysik ETH, Zürich)

Die Beurteilung des Leitungscharakters einer Verbindung ist möglich entweder durch Diskussion der chemischen Bindung oder durch Berechnung von Joneszonen. Auf Grund der Struktur der Verbindung und der Elektronenkonfiguration der Elemente lassen sich die hybridisierten Wellenfunktionen der bindenden Elektronen herleiten. Die Spinabsättigung sämtlicher Valenzelektronen durch Elektronenpaarbindungen entspricht einer vollständig gefüllten Joneszone, d. h. einem Nichtmetall. Beide Methoden führen zum Ziel, solange keine nichtbindenden  $d$ -Elektronen beteiligt sind. Elemente mit nichtaufgefüllter  $d$ -Schale erschweren die Voraussage des Leitungscharakters von Verbindungen erheblich. Die Bedeutung der Joneszone wird illusorisch, sobald Ungewissheit herrscht über die Zahl der bindenden Elektronen und die Rolle der übrigen Elektronen der Valenzschale. Will man nicht Überlappungsintegrale explizit berechnen, so kann man auf Grund der chemischen Bindung immerhin noch Hinweise über den Leitungscharakter erhalten.

Im Kristallfeld spaltet die  $d$ -Schale in verschiedene Niveaux auf. Dadurch werden die für die kovalente Bindung benützten Wellenfunktionen (die ja mit den Anionwellenfunktionen überlappen müssen) von den übrigen Wellenfunktionen energetisch getrennt. Das Überlappen von nur teilweise besetzten Wellenfunktionen führt auf metallisches Verhalten. Halbleitung ist möglich, wenn die  $d$ -Elektronen ein vollbesetztes Unterband bilden, oder wenn die Wechselwirkung mit den Nachbarn so gering ist, dass die unvollständig besetzten Niveaux quasi-diskret bleiben. Denn die lokalisierten  $d$ -Elektronen können nur durch Diffusion zur Leitfähigkeit beitragen, ihr Leitungsmechanismus gleicht somit jenem in organischen Halbleitern. Das zugehörige magnetische Moment muss sich durch Suszeptibilitätsmessungen nachweisen lassen.

Die Aufspaltung der  $d$ -Schale hängt ab vom Kristallfeld, also von der Ladungsverteilung der Nachbarschaft. Grössere Ionenladungen, aber auch grösserer kovalenter Bindungsanteil verstärken die Aufspaltung. Mit zunehmender Hauptquantenzahl des Anions nimmt aber auch die Überlappung von Kation- $d$ -Funktionen mit Anion- $s$ - oder - $p$ -Funktionen zu. Das führt zu einer Verbreiterung der quasidiskreten Niveaus zu Bändern, wodurch die Aufspaltung wieder kompensiert werden kann.

Unter diesem Gesichtswinkel betrachteten wir die Verbindungen mit  $\text{CdJ}_2$ -Struktur, unter denen solche mit, wie auch solche ohne Übergangselemente auftreten. In der  $\text{CdJ}_2$ -Struktur bilden die Anionen eine hexagonale Kugelpackung. Die Hälfte der Oktaederlücken ist durch Kationen besetzt, so dass eine Schichtstruktur entsteht, in der jedes Anion von drei Kationen in Form einer trigonalen Pyramide umgeben ist. Auf Grund der Ionenradienverhältnisse sollten verschiedene dieser Verbindungen im Rutilgitter kristallisieren. Es kann also keine reine Ionenbindung vorliegen. In der nichtverzerrten Struktur kommen für den kovalenten Bindungsanteil (ausser reiner  $p$ -Resonanzbindung) für das Kation  $d^2s^1p^3$ - oder  $sp^3d^2$ -, für das Anion  $p^3$ -Hybridfunktionen in Frage, während die Verzerrungen durch Beimischung weiterer Wellenfunktionen trigonaler Symmetrie berücksichtigt werden können.

In chemisch abgesättigten Verbindungen sind an der Bindung somit sechs Elektronen pro Anion beteiligt. Die im reziproken Gitter durch die Ebenen  $\{110\}$   $\{002\}$  begrenzte Joneszone definiert zusammen mit der Elementarzelle ein Phasenvolumen, das genau soviele Elektronenzustände aufweist, und zwar unabhängig vom Achsenverhältnis  $c/a$ , das im Idealfall 1,633 beträgt. Dieselbe Joneszone ist auch für die Verbindungen vom Wurtzit- und  $\text{NiAs}$ -Typ massgebend.

Wir schliessen daraus, dass alle jene Verbindungen, welche eindeutig sechs bindende Valenzelektronen pro Anion besitzen, nichtmetallisch sind. Dies ist leicht einzusehen bei Verbindungen, welche keine Übergangselemente enthalten ( $\text{MgBr}_2$ ,  $\text{MgJ}_2$ ,  $\text{CaJ}_2$ ,  $\text{ZnJ}_2$ ,  $\text{CdJ}_2$ ,  $\text{GeJ}_2$ ,  $\text{PbJ}_2$ ,  $\text{SiTe}_2$ ,  $\text{SnS}_2$ ,  $\text{SnSe}_2$ ). Der kovalente Bindungsanteil des Kations enthält hier keine inneren  $d$ -Funktionen, ist also von der Form  $sp^3d^2$  oder  $p^3$ . Auch bei den Chalkogeniden von Ti, Zr und Hf erwarten wir Halbleitercharakter. Die kovalente Bindung erfolgt bei ihnen durch einen  $d^2sp^3$ -Hybridzustand. Eine Ausnahme bildet das metallisch leitende  $\text{TiTe}_2$ . In dieser Verbindung scheint Ti nicht mehr rein 4-wertig aufzutreten.

Nichtmetallisches Verhalten zeigen die Halogenide der Übergangselemente. Ihr kovalenter Bindungszustand ist derselbe wie im  $\text{CaJ}_2$ . Die Elektronegativitätsdifferenzen sind noch gross, die Überlappung der  $d$ -Wellenfunktionen gering. Die magnetischen Daten bestätigen die geringe  $d$ -Aufspaltung und das Vorhandensein von mehr oder weniger

lokalisierten  $d$ -Elektronen. Die optischen Eigenschaften im langwelligen Bereich können deshalb durch Übergänge der  $d$ -Elektronen aus den quasidiskreten Niveaux in angeregte Zustände erklärt werden.

Unter den Chalkogeniden mit Übergangselementen finden wir Metalle und Halbleiter. Alle besitzen eine stark deformierte  $\text{CdJ}_2$ -Struktur. Infolge der trigonalen Verzerrung der oktaedrischen Umgebung der Kationen spaltet das  $d\varepsilon$ -Niveau in ein einfaches und ein zweifach entartetes Niveau auf (damit liesse sich die entgegengesetzte Verzerrung des Gitters von  $\text{VSe}_2$  ( $d\varepsilon^1$ ) und  $\text{CoTe}_2$  ( $\ll d\varepsilon^{-1} \gg$ ) als Jahn-Teller-Effekt deuten). Obwohl das magnetische Moment von  $\text{VSe}_2$  genau dem für Halbleiter erwarteten Wert  $s = 1/2$  entspricht, zeigte gesintertes und gepresstes  $\text{VSe}_2$  metallische Leitfähigkeit und eine Thermospannung von  $\sim 30 \mu\text{V}/^\circ\text{C}$  ( $p$ -Typ). Das experimentelle Resultat ist allerdings nicht zwingend, da die stöchiometrische Reindarstellung schwierig ist. Metallischer Charakter könnte bei  $\text{VSe}_2$  zwar durch direkte  $d\varepsilon$ - $d\varepsilon$ -Wechselwirkung zwischen benachbarten Kationen hervorgerufen werden, da die Vergrößerung von  $c/a$  die Kationen einander näher bringt. Das weniger verzerrte  $\text{TaS}_2$  jedoch ist ein Halbleiter.

Bei den übrigen Verbindungen ist jedoch  $c/a < 1,63$ . Voraussetzung für Halbleiterverhalten wäre bei  $\text{CoTe}_2$  und  $\text{RhTe}_2$  die Konfiguration  $d\varepsilon^5$  des Kations, also  $s = 1/2$ , bei  $\text{NiTe}_2$ ,  $\text{PdTe}_2$ ,  $\text{PtS}_2$ ,  $\text{PtSe}_2$  und  $\text{PtTe}_2$  hingegen  $d\varepsilon^6$ , also  $s = 0$ . In Wirklichkeit sind sämtliche Telluride metallisch und schwach paramagnetisch, ihre Thermospannung sehr klein ( $n$ -Typ).  $\text{PtS}_2$ ,  $\text{PtSSe}$  und  $\text{PtSe}_2$  jedoch erwiesen sich als diamagnetische Halbleiter ( $p$ -Typ). Es scheint, dass der Energieunterschied zwischen dem  $d\varepsilon^6$ -Band und dem  $d\varepsilon^4 d\gamma^2$ -Band bei den Telluriden verschwindet, während bei  $\text{PtS}_2$ ,  $\text{PtSSe}$ ,  $\text{PtSe}_2$  und selbst noch bei  $\text{PtSeTe}$  das elektrostatische Kristall-Feld noch genügt, um die beiden Bänder zu trennen. Falls auch die übrigen Zwischenglieder des Systems  $\text{PtSe}_2 - \text{PtTe}_2$  existieren, ergibt sich die Möglichkeit, den Übergang Halbleiter-Metall (oder Semimetall) stetig durchzuführen und eventuell durch äussere Parameter, wie Druck oder Magnetfeld, zu beeinflussen.

## Feldemission aus Silizium

von T. FISCHER

(Laboratorium für Festkörperphysik ETH, Zürich)

Die Feldemission aus Silizium-Einkristallen wurde experimentell untersucht. Die Spitzen wurden durch Ätzen von Si-Stäben in CP-4 hergestellt, in reiner Flußsäure und in absolutem Äthylalkohol vorge-



reinigt. Darauf wurden sie unter einem Druck von höchstens  $10^{-9}$  Torr in einem Strahlungssofen erhitzt, um eine reine und glatte Oberfläche zu erhalten<sup>1) 2)</sup>. Die Reinheit der emittierenden Siliziumoberfläche wurde am Emissionsbild in einer MÜLLER-Röhre geprüft. Es zeigte sich, dass dieses Emissionsbild der reinen Si-Halbkugel von der Wärmebehandlung abhängt.

Das schon bekannte Emissionsbild<sup>2) 3)</sup> ergab sich nach Erwärmen während 10 Minuten auf höchstens  $1350^{\circ}\text{C}$  und Abschrecken. Durch Erhitzen auf  $1400^{\circ}\text{C}$  und Abschrecken liess sich jedoch eine zweite und durch langsames Abkühlen in ca. 60 Minuten eine dritte Figur herstellen. Es war möglich, reproduzierbar von der einen zur andern Figur zu gelangen. Die Symmetrie all dieser Emissionsbilder blieb die gleiche; die Unterschiede lagen in der Intensität der verschiedenen Bereiche. Wir sind der Meinung, dass durch Erwärmen wohl gut gezeichnete Bilder kubischer Symmetrie und stabile Emission erreicht werden können, die Oberfläche aber nicht als völlig rein betrachtet werden kann, da im Emissionsbild immer noch einige flackernde Punkte beobachtet werden konnten. Die elektronenmikroskopische Beobachtung einer vorher auf  $1350^{\circ}\text{C}$  erhitzten Spitze zeigt, dass das Emissionsbild des Siliziums wirklich von der Anisotropie der Austrittsarbeit und nicht von Inhomogenitäten des elektrischen Feldes herrührt.

Das Emissionsgesetz der Feldemission aus Si wird noch nicht verstanden. Verschiedene Experimente ergeben verschiedene Strom-Spannungscharakteristiken, ohne dass man die Ursache dieser Verschiedenheiten kennt. Möglicherweise ist dies auf verschiedene unkontrollierbare Verunreinigungen an der Oberfläche des Siliziums durch Bor<sup>4)</sup> aus dem Pyrexglas zurückzuführen. Nach einer typischen Messung gehorcht die Feldemission über 7 Zehnerpotenzen des Stromes ( $J = 5 \cdot 10^{-6}$  bis  $30\text{ A/cm}^2$ ) dem FOWLER-NORDHEIM-Gesetz für Metalle.

$$I = A \cdot \frac{E^2}{\phi} \exp \left( - B \cdot \frac{\phi^{3/2}}{E} \right)$$

$\phi$  = Austrittsarbeit;

$E$  = elektrisches Feld;

$A, B$  = Universalkonstanten.

Die Korrektur für die Bildkraft  $B$  wurde berücksichtigt.

Es war für die vorliegende Spitzenform etwas schwierig, eine gut angepasste Äquipotentialfläche zu finden<sup>5)</sup>, so dass sich der etwas unsichere Wert von  $\Phi = 4,7 \pm 0,5\text{ eV}$  für die Austrittsarbeit ergab. Die Mengenkongstante  $A$  lag in der Grössenordnung des theoretischen Wertes der Metalle. Es hat aber keinen Sinn, beim jetzigen Stand der Experimente diesen Wert deuten zu wollen. Diese Austrittsarbeit entspricht

einem Gebiet der Oberfläche, das sich zwischen  $4^\circ$  und  $15^\circ$  von der (111)-Richtung befindet. Photometrische Abschätzungen zeigten nämlich, dass ca. 70% der totalen Emission aus diesem Gebiet stammt. Oft wurden aber auch Strom-Spannungscharakteristiken gemessen, die durch obiges Gesetz nicht beschrieben werden.

Eine Deutung im Sinne der Strattonschen Theorie<sup>6)</sup> ist noch nicht möglich. Die Untersuchungen werden fortgesetzt, namentlich um die Austrittsarbeit der reinen Siliziumoberfläche und das Emissionsgesetz quantitativ zu bestimmen.

#### *Literatur*

- 1) A. BRAUN und G. BUSCH, *Helv. Phys. Acta* 20, 33 (1947).
- 2) F. G. ALLEN, *Phys. chem. Sol.* 8, 119 (1959).
- 3) R. PERRY, persönliche Mitteilung.
- 4) F. G. ALLEN, T. M. BUCK, J. T. LAW, *J. Appl. Phys.* 31, 979 (1960).
- 5) M. DRECHSLER und E. HENKEL, *Z. angew. Phys.* 6, 341 (1954).
- 6) R. STRATTON, *Proc. Phys. Soc. [B]* 68, 746 (1955).

### **Hall-Effekt des flüssigen Quecksilbers**

von Y. TIÈCHE

(Laboratorium für Festkörperphysik ETH, Zürich)

Die ersten Versuche zur Bestimmung des Hall-Koeffizienten von flüssigem Hg wurden im Jahre 1914 von FENNINGER<sup>1)</sup> durchgeführt und 1931 von KIKOIN und FAKIDOW<sup>2)</sup> wiederholt. Diese Autoren fanden aber keinen messbaren Hall-Effekt ( $< 0,2 \cdot 10^{-11}$  m<sup>3</sup>/As). Erst 1960 konnten KENDALL und CUSACK<sup>3)</sup> einen Hall-Koeffizienten am flüssigen Hg bestimmen. Diese Messungen wurden mit der konventionellen Methode zwischen dem Schmelzpunkt und Zimmertemperatur gemacht. Es schien uns interessant, diese Messungen mit einer anderen Messmethode zu prüfen und zu erweitern.

#### *Messmethode*

Die Messung des Hall-Koeffizienten bei flüssigen Metallen wird dadurch erschwert, dass dieser Koeffizient sehr klein ist und dass hydrodynamische Bewegungen in der Hall-Probe störende Spannungen erzeugen. BUSCH und VOGT<sup>4)</sup> haben nach eingehenden Experimenten gezeigt, dass die magnetohydrodynamischen Bewegungen Anlass zu einer Unipolarinduktion geben. Diese induzierte Spannung ist proportional dem Produkt  $J \times H^2$ , wo  $J$  der Strom durch die Probe und  $H$

das Magnetfeld ist. Auch verursachen die thermischen Bewegungen der Flüssigkeit eine stetige Verschiebung des isoelektrischen Punktes. Diese Schwierigkeiten werden durch die Benützung einer von RUSSELL und WAHLIG<sup>5)</sup> angegebenen Messmethode aufgehoben.

Durch die Hall-Probe fließt ein Wechselstrom von 85 Hz; die Frequenz des Magnetfeldes ist 50 Hz. Die auftretende Hall-Spannung hat die Differenz und die Summe beider Frequenzen, d. h. 35 Hz bzw. 135 Hz. Die Hall-Spannung mit  $f = 35$  Hz kann mit einem frequenzselektiven Instrument gemessen werden. Der Strom durch die Probe wird durch einen selektiven Kraftverstärker erzeugt.

Die Messung erfolgt mit einer Kompensationsschaltung. Die Referenzspannung wird durch eine geeichte Vergleichsplatte aus InAs geliefert, die sich im gleichen Magnetfeld befindet.

Als Nullinstrument dient ein Vibrationsgalvanometer-Verstärker nach BUSCH<sup>6)</sup>. Die Bandbreite beträgt etwa 0,1 Hz. Das Empfindlichkeitsverhältnis zwischen 35 und 50 Hz ist 80 db. Dieser Vorverstärker in Verbindung mit dem Phasendiskriminator hat eine Empfindlichkeit besser als  $10^{-9}$  Volt/Skt.

### Meßsystem

Fig. 1 zeigt den Aufbau und die Zusammenstellung des Meßsystems. Es besteht aus 2 optisch planpolierten Quarzglasplatten. In die untere Platte werden mit Ultraschall die Löcher für die Sonden und eine Vertiefung gebohrt. Die Dicke der Vertiefung beträgt 0,1 bis 1 mm. Beide Platten und die Sonden werden durch W-Drähte zusammengepresst. Die Schmelze wird durch einen leichten Überdruck (ca. 100 g/cm<sup>2</sup>) in die Kavität eingeführt. Die Hall-Probe misst  $22 \times 6$  mm. Das Messsystem kann bis 1000° C im Vakuum oder in einem Schutzgas gebraucht werden.

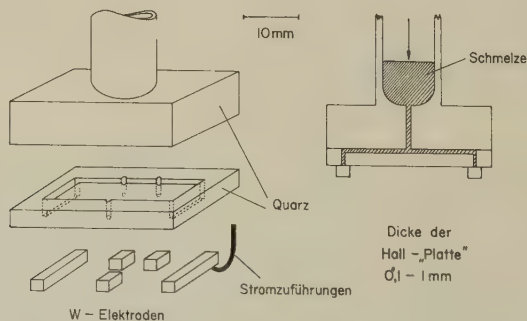


Fig. 1

Aufbau und Schnitt des Meßsystems

# Messungen am flüssigen Quecksilber

Mit der oben beschriebenen Apparatur wurden die elektrische Leitfähigkeit und der Hall-Koeffizient von destilliertem Hg gemessen. Fig. 2 zeigt die Messresultate:

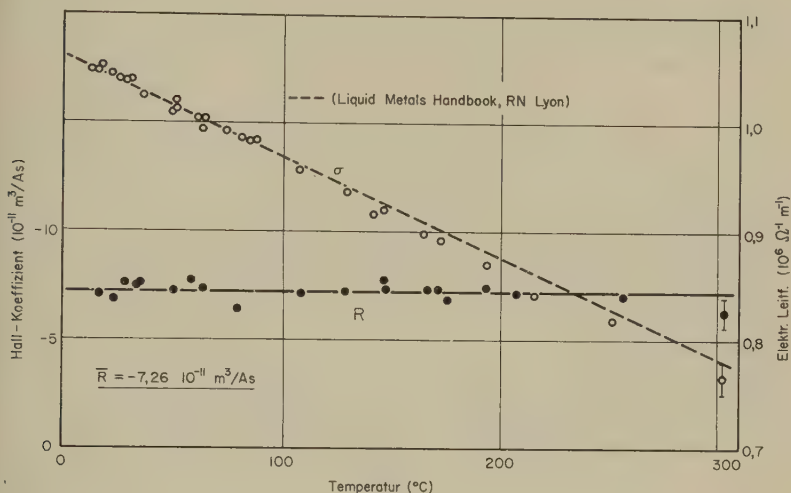


Fig. 2

Elektrische Leitfähigkeit und Hall-Koeffizient des flüssigen Hg

Die elektrische Leitfähigkeit stimmt mit den bekannten Werten innerhalb eines Messfehlers von ca. 3% überein. Der Fehler wird hauptsächlich durch die Bestimmung der Dimensionen der Platte verursacht.

Der Hall-Koeffizient wurde für 2 Schichtdicken, für  $B = 0,05$  und  $0,1 \text{ Vs/m}^2$  und  $J = 1$  und  $3 \text{ A}$ , konstant gefunden. Der Messfehler ist in diesem Fall ca. 10%.  $R_H$  ist zwischen Zimmertemperatur und  $300^\circ \text{ C}$  innerhalb dieses Fehlers temperaturunabhängig:  $\bar{R}_H = (-7,3 \pm 0,5) \cdot 10^{-11} \text{ m}^3/\text{As}$ . Dieser Wert stimmt mit dem Wert von KENDALL und CUSACK ( $R_H = -7,46 \cdot 10^{-11} \text{ m}^3/\text{As}$ ) überein.

Beim Schmelzen nimmt  $R_H$  um 20 bis 40% ab. Dieses Resultat lässt sich nur qualitativ deuten. Der Übergang vom festen in den flüssigen Zustand ist von einer sprunghaften Änderung der Koordinationszahl und der elektrischen Leitfähigkeit begleitet. So geht Hg, das in der festen Phase die Koordinationszahl  $6 + 6$  hat, im geschmolzenen Zustand zu einer weniger dichten Packung mit 8 Nachbarn über. Hg wird weniger metallisch in der Schmelze. Als Folge wäre  $R_H$  grösser, was nicht der Fall ist. Andererseits ist der Sprung der Leitfähigkeit grösser als bei

allen anderen Metallen. Dieser Sprung kann nicht nur durch eine Änderung der Streuung der Ladungsträger erklärt werden, sondern auch durch eine Verkleinerung ihrer Zahl. Setzt man gemischte Leitung voraus, so bewirkt eine Abnahme der Zahl der Elektronen eine Verkleinerung der Leitfähigkeit; der Hall-Koeffizient braucht dagegen nicht zu wachsen. Die Voraussetzung der gemischten Leitung wird durch die Tatsache gestützt, dass andere Elemente der 2. Gruppe einen positiven Hall-Koeffizienten besitzen.

#### *Literatur*

- <sup>1)</sup> W. N. FENNINGER, *Phil. Mag.* 27, 109 (1914).
- <sup>2)</sup> J. KIKOIN und I. FAKIDOW, *Z. Phys.* 77, 393 (1931).
- <sup>3)</sup> P. W. KENDALL und N. E. CUSACK, *Phil. Mag.* 5, 100 (1960).
- <sup>4)</sup> G. BUSCH und O. VOGT, *Helv. Phys. Acta* 27, 241 (1954).
- <sup>5)</sup> B. R. RUSSELL und C. WAHLIG, *Rev. Sci. Instr.* 27, 1028 (1950).
- <sup>6)</sup> G. BUSCH, *Helv. Phys. Acta* 27, 204 (1954).

### **Magnetische Gittersuszeptibilität von Ge-Si-Legierungen**

von O. VOGT

(Laboratorium für Festkörperphysik ETH, Zürich)

Eine ausführliche Arbeit erscheint demnächst in den *Helv. Phys. Acta*

### **Magnetische Suszeptibilität der flüssigen B-Metalle**

von G. BUSCH und S. YUAN

(Laboratorium für Festkörperphysik ETH, Zürich)

Eine ausführliche Arbeit erscheint demnächst in den *Helv. Phys. Acta*

### **Zur paramagnetischen Resonanz von $\text{Cr}^{3+}$ in Spinell ( $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ )**

von E. BRUN, S. HAFNER, H. LOELIGER und F. WALDNER

(Physik-Institut der Universität und Institut für Kristallographie  
und Petrographie der ETH, Zürich)

An natürlichen Spinell-Einkristallen wurden von HAFNER und LAVES<sup>1)</sup> Ultrarot-Absorptionsmessungen und von BRUN, HAFNER, HARTMANN und LAVES<sup>2)</sup> Messungen von elektrischen Quadrupoleffekten an der magnetischen Kernresonanz von  $\text{Al}^{27}$  ausgeführt. Mit beiden Methoden



zeigten sich nach kurzem Erhitzen auf über  $900^{\circ}\text{C}$  Veränderungen der Spektren, die sich als Änderung der Kationenverteilung interpretieren lassen. Mit Messungen der paramagnetischen Elektronenresonanz (EPR) von Verunreinigungen wurde nun versucht, den gleichen Effekt nachzuweisen.

In einem natürlichen dunkelroten Spinell-Einkristall ( $1,2\text{ g}$ )<sup>3</sup> wurde mit EPR im X-Band die von STAHL-BRADA und LOW<sup>4</sup>) beschriebene  $\text{Cr}^{3+}$ -Linie gemessen. Die Linienbreite zeigte praktisch keine Orientierungsabhängigkeit. Nun wurde der Kristall stufenweise auf Temperaturen zwischen  $700^{\circ}\text{C}$  und  $950^{\circ}\text{C}$  erhitzt (ca. 1 Min.), jeweils auf Zimmertemperatur abgeschreckt und mit EPR ausgemessen. Zwischen  $800^{\circ}\text{C}$  und  $900^{\circ}\text{C}$  wurde die  $\text{Cr}^{3+}$ -Linie merklich verbreitert. Im Endzustand nach Erhitzen auf  $950^{\circ}\text{C}$  ist eine deutliche Orientierungsabhängigkeit der Linienbreite feststellbar. In Fig. 1 ist die Linienbreite (Abstand der Wendepunkte der Absorptionskurve) für den natürlichen und den erhitzten Zustand als Funktion des Winkels  $\Theta$  zwischen der Symmetrieachse des elektrischen Kristallfeldes (Würfel diagonale  $[111]$ ) und dem statischen Magnetfeld  $H_0$  aufgetragen. Die grosse Streuung rührt hauptsächlich von teilweiser Überlappung der Linien her. Der rein magnetische Übergang ( $\Theta = 0^{\circ}$ ) wird kaum verbreitert; bei  $\Theta = 30^{\circ}$  steigt die Linienbreite auf 140 Gauss, um bis  $\Theta = 90^{\circ}$  auf ca. 90 Gauss zu sinken.

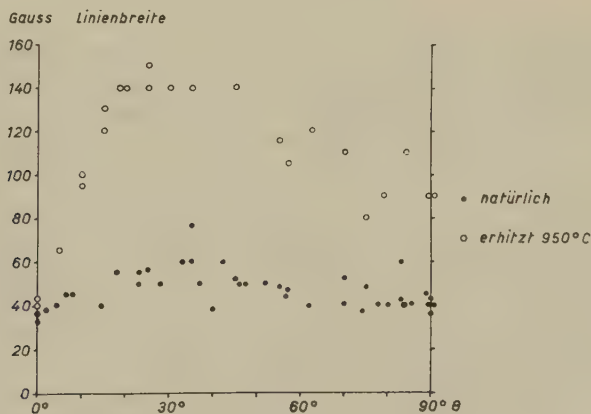


Fig. 1

Linienbreite des  $\text{Cr}^{3+}$ -Übergangs in Spinell

Synthetische Spinelle<sup>5</sup>) (z. B.  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  mit  $\text{MgO}/\text{Al}_2\text{O}_3 = 1/3,5$  oder  $1/1$ ) zeigen eine ähnliche Winkelabhängigkeit der Linienbreite wie der erhitzte natürliche Spinell.

Wenn die Verbreiterung allein durch Winkeländerungen der Symmetrieachse des elektrischen Feldes verursacht würde, so dürfte bei  $90^\circ$  die Linie nicht breiter als bei  $\Theta = 0^\circ$  sein. Der vorliegende Verlauf lässt sich besser durch Variation der Nullfeldaufspaltung  $2D$ , verbunden mit einer Winkelvariation der Symmetrieachse des elektrischen Feldes interpretieren.

Nach Tempern bei ca.  $700^\circ \text{ C}$  während 2 Monaten war ein leichter Rückgang der Linienverbreiterung sichtbar.

Wie bei den eingangs erwähnten Arbeiten<sup>1) 2)</sup> zeigen auch Messungen mit EPR Veränderungen, die auf eine ungeordnete Kationenverteilung im Spinell schliessen lassen. Durch langfristige Wärmebehandlung können diese Effekte teilweise rückgängig gemacht werden.

#### *Literatur*

- 1) S. HAFNER und F. LAVES, Fortschr. Mineral. 38 (1960) (im Druck).
- 2) E. BRUN, S. HAFNER, P. HARTMANN und F. LAVES, Naturwiss. 12, 277 (1960).
- 3) Dieser Spinell wurde uns freundlicherweise von Herrn Dr. E. GÜBELIN (Luzern) verschafft.
- 4) R. STAHL-BRADA and W. LOW, Phys. Rev. 116, 561-564 (1959).
- 5) Die synthetischen Spinelle verdanken wir bestens Herrn Prof. Dr. W. F. EPPLER (Wiedes Carbidwerk, Freyung).

### **Étalons de fréquence au césium, description et résultats**

par P. KARTASCHOFF\*), J. BONANOMI\*\*) et J. DE PRINS\*)

#### *Description*

Deux étalons de fréquence à jet atomique de césium<sup>1-5)</sup> ont été construits au L.S.R.H. à Neuchâtel. Leurs dimensions mécaniques sont les suivantes:

	<i>No 1</i>	<i>No 2</i>
Longueur d'interaction . . . . .	110 cm	408 cm
Longueur totale . . . . .	250 cm	600 cm
Diamètre du récipient à vide . . .	25 cm	25 cm

Le N° 1 étant une exécution préliminaire, la description suivante concerne principalement le N° 2.

\*) Laboratoire suisse de recherches horlogères, Neuchâtel.

\*\*) Observatoire de Neuchâtel.

*Géométrie du jet*

Une géométrie asymétrique du jet, semblable à celle des Atomichrons<sup>3)</sup>, a été adoptée. La fente de collimation placée habituellement au centre a été supprimée et le jet est défini par les bords des entrefers des aimants A et B. Les positions de la source du jet et du détecteur sont ajustables perpendiculairement au jet. Une sélection des atomes lents est ainsi possible, ce qui permet une réduction importante de la largeur de raie.

*Forme du jet, source et détecteur*

La section du jet à la source et au détecteur est de  $0,7 \times 10$  mm. La source utilise du Cs métallique à une température de  $100^\circ$  C environ. Le détecteur est un ionisateur à ruban de tungstène chaud, suivi par un spectromètre de masse simplifié et un multiplicateur d'électrons secondaires de 17 étages.

*Champ haute fréquence et champ  $H_c$* 

La cavité est une structure entièrement résonnante en forme de  $U$  avec un facteur de qualité  $Q = 10^4$ . La partie horizontale de cette structure a une longueur de 408 cm. Les deux sections verticales, traversées par le jet, ont une dimension de 5 cm dans la direction du jet, tandis que dans la plupart des autres réalisations, cette dimension n'est que de 1 cm environ.

Ceci permet l'utilisation d'un champ magnétique continu  $H_c$  plus faible dans la région de transition. Contrairement à l'usage général, les champs H.F. dans les deux sections d'interaction ne sont pas en phase mais déphasés de  $180^\circ$  ceci permettant de réaliser un meilleur rapport de signal-bruit au centre de la résonance atomique. L'accord de la cavité entière peut être varié depuis l'extérieur par un piston en teflon sur un domaine de 2 Mc/s environ.

Le champ  $H_c$  est produit par 4 fils tendus le long du jet à l'intérieur d'un écran double. L'écran extérieur est un tube en acier doux (diamètre intérieur 125 mm) qui sert également de structure portante. L'écran intérieur est un tube en  $\mu$ -métal. Le champ résiduel mesuré à l'intérieur est plus que 100 fois inférieur au champ magnétique terrestre.

*Aimants A et B*

Utilisant du Ticonal, ces aimants permanents produisent un champ de 9500 Oe. Les entrefers ont une longueur de 15 cm, une largeur de 4 mm et les rayons des pièces polaires sont de 10 et 11 mm. Les aimants sont montés dans des boîtes d'écran construits en acier doux et en fer Armco.

La structure de jet entièrement autoportante repose sur des petits chariots à l'intérieur du récipient à vide poussé. L'installation à vide comprend une pompe à diffusion d'huile autofractionnante (vitesse de pompage 600 l/s) et plusieurs trappes à air liquide.

### *Partie électronique<sup>6)</sup>*

L'énergie micro-onde est produite par un klystron qui est synchronisé en phase sur un multiple de la fréquence d'un oscillateur à quartz de 8,5 Mc/s. Cet oscillateur est modulé en fréquence à 20 c/s. La modulation de l'amplitude du courant ionique est détectée dans un discriminateur de phase produisant un signal de correction appliqué à l'oscillateur à quartz.

### *Résultats:*

#### *a) Propriétés de l'étalon L.S.R.H. No 2*

1) La largeur de raie observée est de 40 c/s sans sélection de vitesse (fig. 1a) et diminue à 24 c/s avec sélection de vitesse (fig. 1b). Des raies encore plus étroites ont été obtenues avec une perte correspondante de rapport signal-bruit.

2) La fréquence extrapolée à champ zéro est reproductible à mieux que  $\pm 2 \cdot 10^{-11}$ .

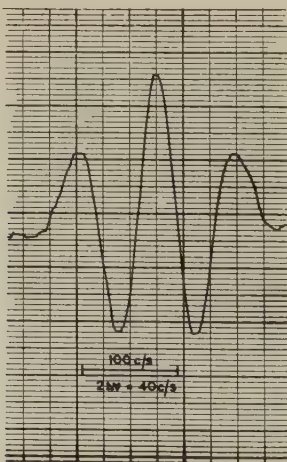


Fig. 1a

3) Une bonne homogénéité du champ  $H_c$  est indiquée par le fait qu'il a été possible d'observer des raies de résonance du type Ramsey sur les transitions qui dépendent fortement du champ magnétique.

4) L'influence de la puissance excitatrice, correspondant à une variation de l'amplitude de la raie Ramsey du maximum à un cinquième de cette valeur est inférieure à  $7 \times 10^{-11}$ .

5) Une variation de l'accord de la cavité sur le domaine de 2 Mc/s produit un décalage de la fréquence inférieur à  $5 \cdot 10^{-11}$ .

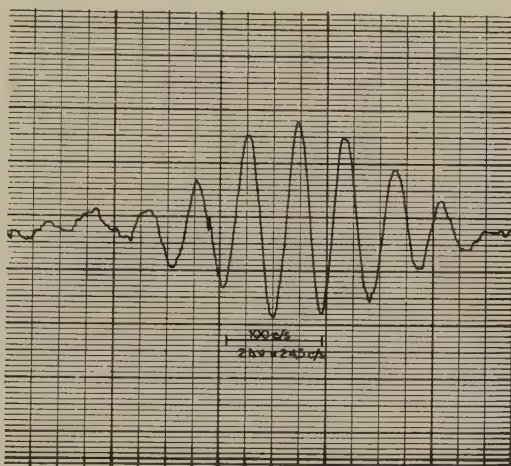


Fig. 1b

### b) Comparaisons par rapport à d'autres étalons

Des comparaisons avec d'autres étalons au césium ont été faites depuis juin 1960 à l'aide des émissions sur ondes très longues des stations GBR (Rugby, Angleterre, 16 Kc/s) et NBA (Zone du canal de Panama, 18 Kc/s), reçues à l'Observatoire de Neuchâtel, en utilisant la méthode d'enregistrement de phase de PIERCE<sup>7)</sup><sup>8)</sup>.

Les moyennes journalières (15 h 00–15 h 00 TU) ont été comparées aux moyennes correspondantes obtenues par les autres laboratoires et rapportées dans la figure 2. De haut en bas sont reproduites les comparaisons avec les laboratoires suivants:

- 1) Harvard University, Cruft Laboratory, Cambridge, Mass. USA. Etalon: Atomichron S. 112. Mesures par rapport à NBA et GBR.
- 2) U.S. Naval Observatory, Washington D.C. USA. Corrections de NBA basées sur les Atomichrons du U.S. Naval Research Laboratory.
- 3) National Physical Laboratory, Teddington, Angleterre, Corrections de NBA basées sur l'étalon de fréquence au césium du NPL.



- 4) Post Office Research Station, Dollis Hill, Angleterre. Corrections de GBR basées sur l'étalon au césium du NPL.
- 5) CNET, Bagneux (Seine). Corrections de NBA et GBR basées sur l'Atomichron No 107.

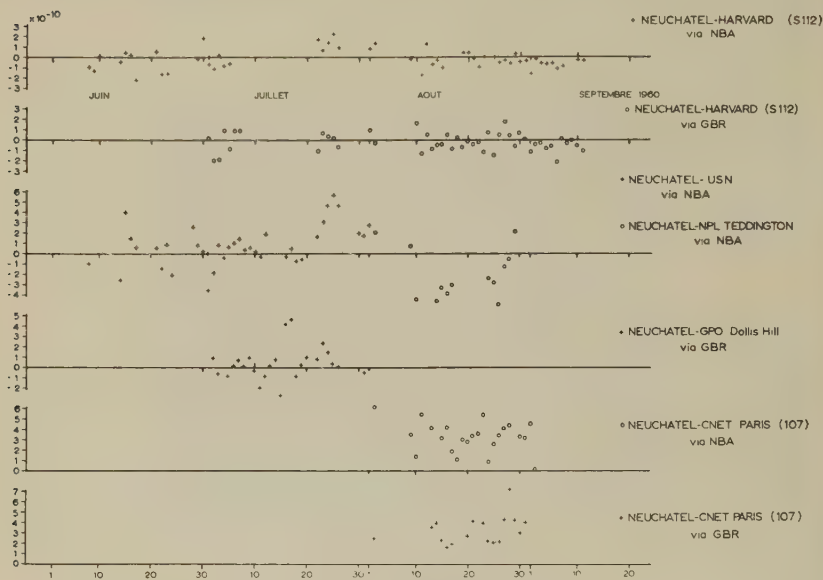


Fig. 2

Les mesures montrent un accord excellent entre Neuchâtel et Harvard; l'écart de la moyenne est de  $3 \cdot 10^{-11}$ .

Le plus grand écart observé a été de  $2,2 \cdot 10^{-10}$ . L'écart quadratique moyen (variance) des mesures journalières est inférieur à  $10^{-10}$ .

Les dispersions et les écarts systématiques des autres comparaisons sont nettement supérieurs. Ils peuvent être attribués à trois causes:

- 1) Ecart de la fréquence des étalons à césium;
- 2) Erreurs de mesure des fréquences de NBA et GBR y compris les effets de propagation<sup>7) 8)</sup>;
- 3) Erreurs dues à des fluctuations d'horloges à quartz servant à l'interpolation entre des étalonnages successifs par les étalons à césium.

### Bibliographie

- <sup>1)</sup> N. F. RAMSEY, Molecular Beams, Oxford 1952.
- <sup>2)</sup> L. ESSEN et J. V. L. PARRY, Phil. Trans. Roy. Soc., London 250, 45 (1957).
- <sup>3)</sup> J. HOLLOWAY, W. MAINBERGER, F. H. REDER, G. M. R. WINKLER, L. ESSEN et J. V. L. PARRY, Proc. Inst. Rad. Engr. 47, 1730 (1959).

- 4) J. BONANOMI, J. DE PRINS et P. KARTASCHOFF, Comptes rendus du Congrès International de Chronométrie, Munich 1959.
- 5) J. DE PRINS et P. KARTASCHOFF, Scuola Internazionale di Fisica «Enrico Fermi» (1960), (à paraître).
- 6) P. KARTASCHOFF, Bull. Ass. Suisse des Electriciens 51, 1080 (1960).
- 7) J. A. PIERCE, Proc. Inst. Rad. Engr. 45, 794 (1957).
- 8) J. A. PIERCE, Proc. 13th Annual Symposium on Frequency Control, Ft. Monmouth N. J. 1959.

## Effet Hall du Ni très pur à basse température

par R. HUGUENIN et D. RIVIER

(Laboratoire de Physique de l'Université de Lausanne)

1. Il est bien établi expérimentalement que la constante de Hall aimantation  $R_s$  des ferromagnétiques dépend fortement de la température<sup>1)</sup>. D'autre part, les théories développées ces dernières années par différents auteurs, qui attribuent l'effet Hall aimantation à l'interaction spin-orbite, conduisent toutes à une proportionnalité entre  $R_s$  et la résistivité  $\rho$  élevée à une certaine puissance, 2 selon KARPLUS et LUTTINGER<sup>2)</sup>,  $3/2$  ou 2 selon SMIT<sup>3)</sup>, et selon LUTTINGER<sup>4)</sup>, 1 pour les métaux purs et 2 pour les alliages. Les résultats expérimentaux ne sont que partiellement en accord avec ces théories; l'exposant de la résistivité est généralement compris entre 1 et 2 pour les températures supérieures à 80° K. Aux températures inférieures, le comportement de  $R_s$  est très différent suivant les expérimentateurs. La constante de Hall aimantation du Ni pur est nulle à 20° K selon SMIT ( $\rho_{290^\circ \text{K}}/\rho_{20^\circ \text{K}} = 115$ ); selon VOLKENSTEIN, FEDOROV et VONSOVSKI<sup>5)</sup> ( $\rho_{293^\circ \text{K}}/\rho_{20^\circ \text{K}} = 97$ )  $R_s$  présente un minimum non nul entre 20 et 30° K et croît d'environ 30% jusqu'à 4° K.

2. Nous avons observé, entre 4° K et 293° K, l'effet Hall d'un échantillon de Ni JOHNSON-MATTHEY 99,9990%, dont le rapport de résistivité  $\rho_{293^\circ \text{K}}/\rho_{4,2^\circ \text{K}}$  est égal à 170. Les mesures à 4° K, 65° K, 77° K, 273° K et 293° K sont faites dans des bains d'hélium, d'azote et d'eau distillée. L'appareillage utilisé permet en outre d'obtenir par chauffage des températures intermédiaires. La tension de Hall est mesurée de façon classique sur une plaque de dimensions  $15 \times 4,5 \times 0,1$  mm, au moyen d'un amplificateur de galvanomètre à cellules photoélectriques dont la sensibilité maximum est de 300 mm/ $\mu$ V. Le champ magnétique est fourni par un électroaimant Oerlikon pouvant donner un champ magnétique de 2,5 Vs/m<sup>2</sup> dans un entrefer de 4,5 cm. La température est mesurée par la pression de vapeur saturante de N<sub>2</sub> et He ou, dans les régions intermédiaires, par un thermomètre en cuivre électrolytique

étalonné à l'aide de la fonction  $Z(T)$  proposée par WHITE<sup>6</sup>). Un pont de KELVIN sert à la mesure de la résistance du thermomètre.

3. Les résultats obtenus sont réunis dans la figure 1. De 293° K à 65° K, la résistivité de Hall  $\varrho_H$  en fonction du champ magnétique  $B$  est

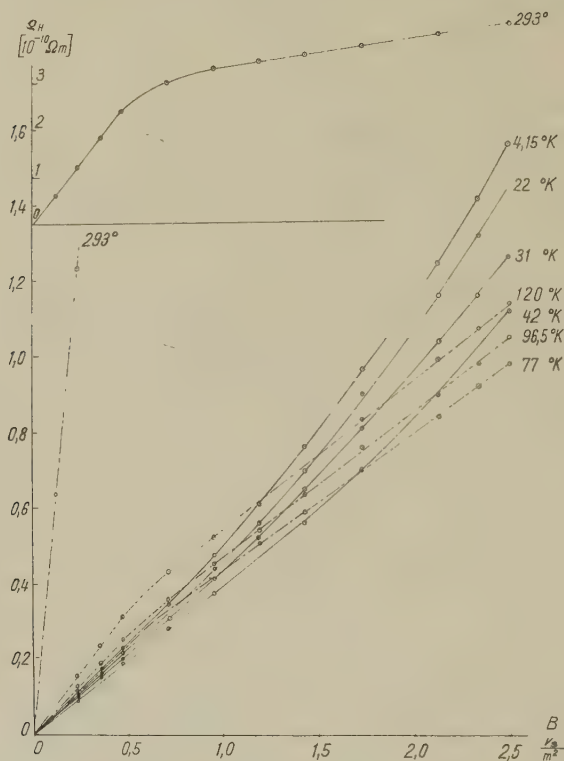


Fig. 1

représentée par la courbe habituelle, devenant pour les champs faibles une droite de pente

$$R_1 = \left( \frac{\partial \varrho_H}{\partial B} \right)_{B \ll B_s}$$

(pour le Ni  $B_s \simeq 0,6$  Vs/m<sup>2</sup>) et pour les champs élevés une droite de pente

$$R_0 = \left( \frac{\partial \varrho_H}{\partial B} \right)_{B \gg B_s}$$

$R_0$  est la constante champ (ordinaire),  $R_1$  la constante extraordinaire et la différence  $R_1 - R_0 = R_s$  donne la constante aimantation.

Dès et au-dessous de  $42^\circ\text{K}$ , la dépendance de  $\varrho_H$  avec  $B$  cesse d'être linéaire pour des champs  $B$  suffisamment élevés, d'abord beaucoup plus grands que  $B_s$ , mais d'autant plus petits que la température est plus basse. Pour une valeur donnée de  $B$ ,  $\varrho_H$  augmente lorsque  $T$  diminue.

Nous avons représenté dans la figure 2 la fonction  $(\partial \varrho_H / \partial B)(B)$  qui détermine les constantes champ et aimantation. Pour les températures  $\geq 65^\circ\text{K}$  cette fonction présente 2 paliers, l'un pour  $B < 0,45 \text{ Vs/m}^2$ , l'autre pour  $B > 0,7 \text{ Vs/m}^2$ . La distance entre les paliers mesure la constante aimantation. A partir de  $42^\circ\text{K}$ ,  $\partial \varrho_H / \partial B$  est une fonction monotone croissante de  $B$ , sans aucune particularité pour les valeurs de  $B$  voisines de  $B_s$ . Ce comportement trouve son explication la plus simple dans l'hypothèse que  $R_s$  est nulle à basse température, à partir d'une température comprise entre  $42$  et  $65^\circ\text{K}$ .

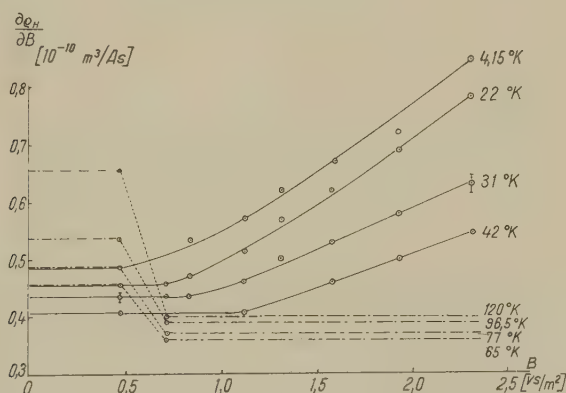


Fig. 2

4. Les considérations suivantes confirment l'hypothèse que  $R_s$  est nulle à basse température. On peut démontrer la validité d'une loi de Kohler généralisée à la partie ordinaire de tout le tenseur magnétorésistance<sup>7)</sup>. Cela conduit pour l'effet Hall à la relation

$$\frac{\varrho_{H0}}{\varrho_0} = f\left(\frac{B}{\varrho_0}\right),$$

où  $\varrho_0$  est la résistivité pour  $B = 0$ , et  $\varrho_{H0}$  la partie ordinaire de  $\varrho_H$ .

Dans la figure 3, nous avons, en fonction de  $B/\varrho_0$ , reporté: pour  $T \geq 65^\circ\text{K}$ ,

$$\frac{\varrho_{H0}}{\varrho_0} = \frac{R_0 B}{\varrho_0},$$

et pour  $T \leq 42^\circ\text{K}$ ,  $\varrho_{H0}/\varrho_0 = \varrho_H/\varrho_0$ . Les points correspondants aux températures extrêmes,  $4^\circ\text{K}$  et  $293^\circ\text{K}$ , sont alors sur la même courbe. La

courbure qui apparaît aux champs élevés et aux basses températures est en accord avec la prédiction théorique d'une loi quadratique en  $B$  pour la constante ordinaire. Les points correspondant aux températures intermédiaires ne sont pas sur la même courbe, ce qui est probablement dû au fait que la loi de Kohler est valable seulement lorsqu'il y a un seul temps de relaxation<sup>7)</sup>.

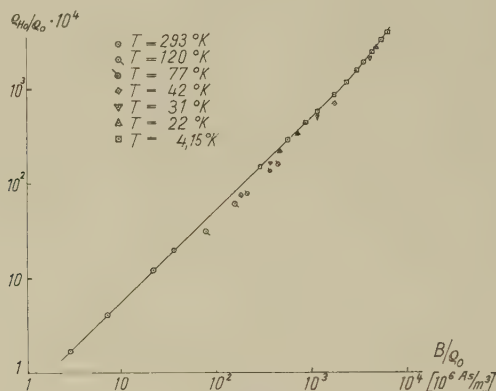


Fig. 3

5. Le comportement de  $R_s$  en fonction de la température est en partie conforme aux prévisions théoriques. En effet, de 293 à 120° K,  $R_s$  est proportionnel à  $Q^n$  avec un exposant  $n$  égal à 1,7. Par contre, au-dessous de 120° K,  $R_s$  est une fonction plus compliquée, bien qu'encore monotone croissante comme le montre la figure 4.

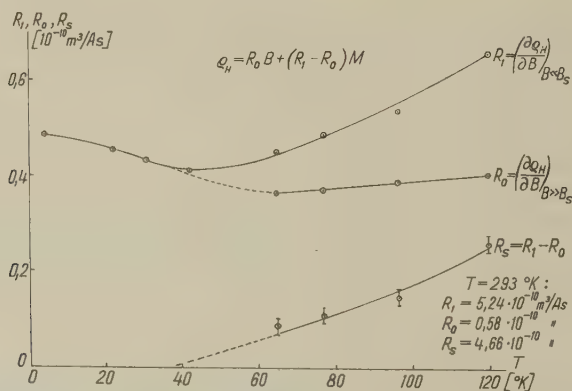


Fig. 4



Nous remercions MM. L. RINDERER et L. BERGER des discussions que nous avons eues avec eux, ainsi que le Fonds National de la Recherche Scientifique de son aide financière.

### *Bibliographie*

- <sup>1)</sup> SEITZ et TURNBULL, Solid State Physics (Academic Press 1957), Vol. 5, article par J.-P. JAN, p. 79.
- <sup>2)</sup> KARPLUS et LUTTINGER, Phys. Rev. *95*, 1154 (1954).
- <sup>3)</sup> J. SMIT, Thèse, Leiden (1956).
- <sup>4)</sup> J. M. LUTTINGER, Phys. Rev. *112*, 739 (1958).
- <sup>5)</sup> VOLKENSTEIN, FEDOROV et VONSOVSKI, Soviet Physics JETP, *35*, 61 (1959).
- <sup>6)</sup> G. K. WHITE, Experimental Techniques in Low-Temperature Physics, Oxford 1959, p. 115.
- <sup>7)</sup> G. CHAMBERS, Proc. Roy. Soc. *238A*, 344 (1956); D. RIVIER (à paraître).

## **Inelastische Streuung von 10 MeV-Protonen an verschiedenen Kernen**

par V. MEYER et N. HINTZ  
(Zurich, Univ. Phys. Inst.)

Paraîtra dans «Nuclear Physics»

## **Ein symmetrischer 4-MV-Kaskadengleichrichter zur Speisung eines Ionenbeschleunigers**

VON J. SEITZ, G. REINHOLD und R. MINKNER  
(Emil Haefely & Cie. AG., Basel)

### **I.**

Im Jahre 1932 publizierten COCKCROFT und WALTON<sup>1)</sup> ihre Ergebnisse von Experimenten mit künstlich beschleunigten Ionen. Die Beschleunigung erfolgte durch Anlegen einer Gleichspannung von 800 kV an ein entsprechendes Beschleunigungsrohr. Zur Erzeugung der hohen Gleichspannung entwickelten sie einen Kaskadengleichrichter, ohne von der bereits 10 Jahre vorher von GREINACHER<sup>2)</sup> beschriebenen Kaskadenschaltung Kenntnis zu haben.

Der Kaskadengleichrichter ist ein bequemes und viel verwendetes Hilfsmittel, um hohe Gleichspannungen zu erzeugen. Bis vor kurzem war es aber nicht möglich, mit seiner Hilfe Spannungen von mehreren

Millionen Volt zu erreichen. Die Gründe sind darin zu suchen, dass mit steigender Spannung grössere Stufenzahlen nötig werden. Daraus folgen zwangsläufig eine grössere Welligkeit und ein grösserer Spannungsabfall. Diese können sehr bald unzulässig hohe Werte annehmen.

Mit dem sogenannten symmetrischen Kaskadengleichrichter<sup>3)</sup> lassen sich die Schwierigkeiten wenn auch nicht vollständig, so doch bis zu einem gewissen Grade überwinden.

Die Vorteile dieses Generators gehen aus einer Gegenüberstellung der Formeln für Welligkeit und Spannungsabfall hervor:

Tabelle 1

$N$  = Stufenzahl,  $U_0$  = Scheitelwert der Eingangswechselspannung,  $J$  = Gleichstrommittelwert,  $f$  = Speisefrequenz,  $C$  = Stufenkapazität,  $C_s$  = Streukapazität zwischen Schub- und Glättungssäule pro Stufe. Diskussion der Gleichungen im Text.

	Greinacherkaskade	Symmetr. Kaskade
Ideale Ausgangsspannung	$U_{g0} = 2 N U_0$	$U_{g0} = 2 N U_0$
Welligkeit, hervorgerufen durch Umladung der Kondensatoren	$\delta U = \frac{J}{fC} \frac{1}{2} N (N+1)$	$\delta U = \frac{J}{fC} \frac{1}{2} N$
Welligkeit, hervorgerufen durch kapazitive Blindströme	$\delta' U = U_0 \frac{C_s}{C} \frac{1}{2} N (N+1)$	$\delta' U = 0$
Spannungsabfall, hervorgerufen durch Umladung der Kondensatoren	$\Delta U_g = \frac{J}{fC} \frac{N}{3} (2N^2 + 1)$	$\Delta U_g = \frac{J}{fC} \frac{N}{3} \left( \frac{N^2}{2} + 1 \right)$

Eine Erhöhung von  $U_{g0}$  ist, wie die Formel-Zusammenstellung zeigt, ausser durch eine Erhöhung der Eingangsspannung  $U_0$  nur durch eine Erhöhung der Stufenzahl  $N$  möglich. Einer Erhöhung der Eingangsspannung  $U_0$  sind Grenzen gesetzt. Einerseits sind keine Gleichrichterventile für beliebig hohe Sperrspannungen erhältlich, andererseits ist es nötig, Kaskadengleichrichter für mehrere Millionen Volt in einen Drucktank einzubauen. Dies erfordert eine gedrängte Bauweise. Der Abstand zwischen Schub- und Glättungssäule wird durch die Eingangswechselspannung vorgeschrieben.

Will man die Stufenzahl  $N$  erhöhen, so zeigt die Tabelle 1, dass die Welligkeit  $\delta U$  bzw.  $\delta' U$  für die Greinacherkaskade quadratisch mit der Stufenzahl wächst; bei der symmetrischen Kaskade ist die Umladungswelligkeit der Stufenzahl proportional; die kapazitive Welligkeit ist aus Symmetriegründen Null.

Schliesslich zeigt die Tabelle, dass der Spannungsabfall, der durch die Umladung der Kondensatoren bedingt ist, bei der symmetrischen Kaskade viermal kleiner ist als bei der Greinacherkaskade.

Es sei noch erwähnt, dass die angegebenen Gleichungen nur unter vereinfachenden Voraussetzungen gelten. Insbesondere sind die komplexen Widerstände in den Gleichrichterventilen und den Hochspannungstransformatoren nicht berücksichtigt.

Auf die anderen Massnahmen, die ebenfalls zu einer Reduktion der Welligkeit und des Spannungsabfalles führen, wie z. B. Erhöhung der Speisefrequenz und der Stufenkapazität  $C$ , kann in diesem Zusammenhang nicht eingegangen werden. Man findet nähere Angaben in dem zusammenfassenden Artikel von E. BALDINGER<sup>4)</sup> im Handbuch der Physik.

## II.

Nachdem die Richtigkeit der Formeln für den symmetrischen Kaskadengleichrichter an Hand von Experimenten an Modellen geprüft worden war, wurde mit dem Bau eines 4-MV-Gleichrichters begonnen. Diese Anlage steht nun seit einiger Zeit im Physikalischen Institut der Universität Basel im Betrieb und dient zur Speisung eines Ionenbeschleunigungsrohres. Der Gleichrichter wurde geprüft, indem anstelle des Beschleunigungsrohres ein Belastungswiderstand von 1 mA Nutzstrom eingebaut wurde. Die Anlage lief so während eines Dauerbetriebes 12 Stunden bei 4 MV. Über die Versuche am Gleichrichter in Verbindung mit dem Beschleunigungsrohr erfolgt ein separater Bericht von E. BAUMGARTNER, R. GALLI und P. HUBER<sup>5)</sup>. Die folgende Beschreibung beschränkt sich auf den 4-MV-Kaskadengleichrichter und seine Hilfseinrichtungen.

Der 4-MV-Kaskadengleichrichter besteht aus 20 identischen Stufen. Jede Stufe hat eine Nennspannung von 200 kV. Sie wird von einem Äquipotentialring von elliptischem Querschnitt gegen die Tankwand elektrostatisch abgeschirmt. Um die kapazitive Welligkeit, die theoretisch Null sein sollte, so klein wie möglich zu halten, ist die ganze Anlage streng symmetrisch gebaut. Die Speisefrequenz des Gleichrichters beträgt 10 kHz. Sie wird mit einer Frequenzumformergruppe erzeugt. Die Ausgangsspannung der Gruppe wird in 2 Hochspannungstransformatoren auf 90 kV transformiert und den beiden Schubsäulen zugeführt. Die Kapazitäten in den Schub- und Glättungssäulen bestehen aus Ölpapierkondensatoren. Sie sind eingebaut in Isolierzylinder aus Haefelyt PQ, einem Gemisch aus Araldit und Quarzpulver. Jeder Stufenkondensator ist mit einem Dämpfungswiderstand (siehe Fig. 1) versehen, der bei Kurzschlüssen den Entladungsstrom begrenzt. Entsprechend

den 20 Stufen sind 80 Selenventile vorhanden. Die Selenelemente befinden sich in Plexiglaszylindern unter Öl und sind für 5 mA Gleichstrom dimensioniert. Wegen der hohen Speisefrequenz und der gedrängten Bauweise entstehen zwischen den Schubsäulen beträchtliche Blindströme. Diese werden durch 15 Hochspannungsdrosseln von je ca. 17 Hy zwischen den Schubsäulen kompensiert (Fig. 1).

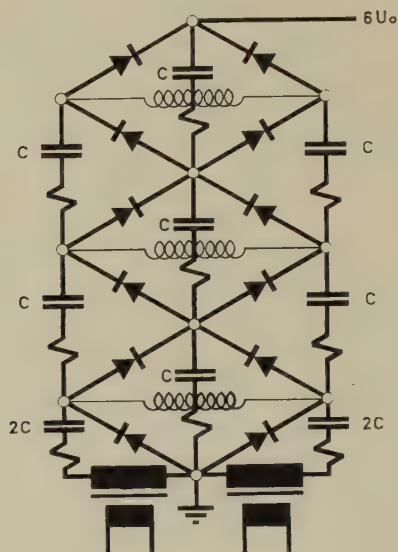


Fig. 1

Dreistufiger symmetrischer Kaskadengleichrichter mit Kompensationsdrosseln und Dämpfungswiderständen in den Stufenkondensatoren

Die Leistung für die elektrischen Hilfseinrichtungen zur Hochfrequenz-Ionenquelle wird in einem 400-Hz-Generator erzeugt. Er ist in der Hochspannungskuppel untergebracht und wird mit einer Isolierwelle angetrieben. Zur Steuerung des 300-Watt-Hochfrequenzoszillators und der Hilfsspannungen für das Ioneneinschuss-System werden weitere 6 Isolierwellen verwendet. Sie werden mit Servomotoren vom Kommandopult aus bedient. In der Hochspannungskuppel befinden sich 4 Kontroll-Messinstrumente. Sie können durch ein Fenster im Drucktank mit einer Fernsehkamera vom Kommandopult aus beobachtet werden.

Der ganze Hochspannungsgenerator ist in einen Drucktank eingebaut. Als Isoliergas findet ein Gemisch von 90%  $N_2$  und 10%  $CO_2$  unter einem Druck von 10 atü Verwendung. Der Taupunkt des Druckgases

liegt unterhalb  $-20^{\circ}\text{C}$ . Die in den Selenventilen, Hochspannungsdrosseln und Kondensatoren entstehende Wärme würde ohne spezielles Kühlsystem zu einem unzulässigen Temperaturanstieg im Druckgas führen. Ein Ventilationssystem und eine Kühlmaschine sorgen für eine konstante Gastemperatur von  $20^{\circ}\text{C}$  im Tank.

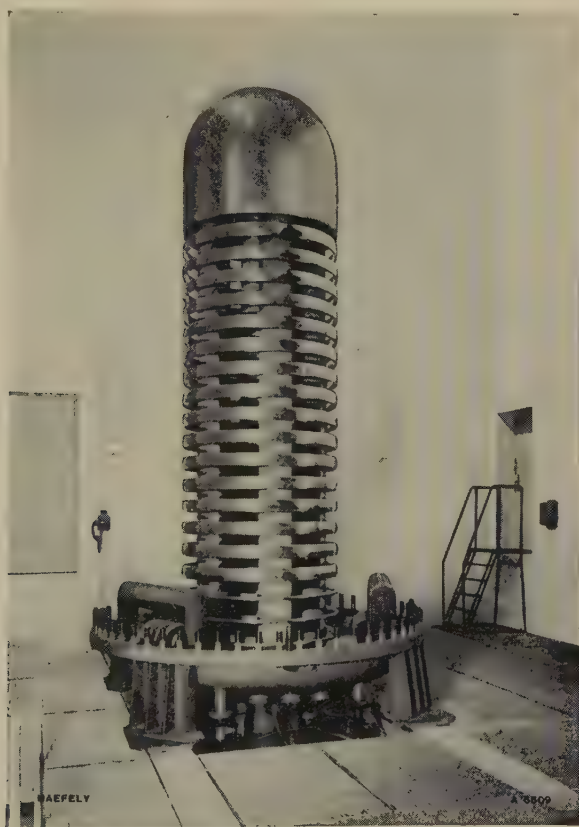


Fig. 2

Ansicht des 4-MV-Generators bei entferntem Drucktank

Bei einem der ersten Versuche am 4-MV-Kaskadengleichrichter wurde bei 4 MV und 1 mA Belastungsstrom eine Welligkeit von  $800 V_{\text{eff}}$  gemessen. Die Messung erfolgte über eine kapazitive Sonde, die an einem Fenster des Drucktanks angebracht war. Es stellte sich heraus, dass diese Restwelligkeit von einer Unsymmetrie des Kaskadengleichrichters herrührte. Daraufhin wurde versucht, diese zu beseitigen, und





richters gegen Erde isoliert. Wird hier eine regelbare Spannung angelegt, so ändert sich entsprechend die Beschleunigungsspannung. Messungen am Hochspannungsregelverstärker (in Fig. 3) haben ergeben, dass er in der Lage ist, Spannungen von  $\pm 20$  kV mit einer Zeitkonstante von 1 ms zu erzeugen. Die Steuersignale für die beiden erwähnten Regelkreise sollen vom Hochspannungswiderstand bzw. von einem Analysatormagnet hohen Auflösungsvermögens geliefert werden, welcher vom Physikalischen Institut der Universität Basel gebaut wird und sich in Montage befindet. Die Regelkreise sind für eine Spannungskonstanz von  $\pm 1$  kV bei einem Belastungsstrom von 1 mA ausgelegt.

#### *Literatur*

- 1) J. D. COCKCROFT and E. T. S. WALTON, *Proc. Roy. Soc. Lond. [A]* **136**, 619–630 (1932).
- 2) H. GREINACHER, *Bull. Schweiz. Elektrotechn. Ver.* **11**, 59–66 (1920).
- 3) W. HEILPERN, *Helv. Phys. Acta* **28**, 485–491 (1955); G. REINHOLD, J. SEITZ und R. MINKNER, *Z. Instrumentenkunde* **67**, 258 (1959).
- 4) E. BALDINGER, *Handbuch der Physik*, Bd. XLIV, Springer-Verlag, Berlin, Göttingen, Heidelberg (1959).
- 5) E. BAUMGARTNER, R. GALLI und P. HUBER, erscheint *Helv. Phys. Acta* **34**, (1961).

### **Etude du séchage et de la restitution des émulsions nucléaires à l'aide d'un polyéthylène glycol (carbowax)\*)**

par L. PINTO HESPAHOL

(Laboratoire de Recherches Nucléaires, E.P.U.L., Lausanne)

A. SAMMAN et G. VANDERHAEGHE

CERN, (Genève)

Un polyéthylène glycol de formule générale  $\text{RO} \cdot \text{CH}_2(\text{CH}_2\text{OCH}_2)_x \text{CH}_2\text{OH}$  fabriqué par l'Union Carbide Chemicals Company et vendu sous l'appellation commerciale «Carbowax» a été utilisé pour le séchage et la restitution de l'épaisseur des émulsions nucléaires. Pour des poids moléculaires moyens de 200, 300 et 400, c'est un liquide transparent, visqueux, hydrophile, et de très faible tension de vapeur; l'indice de réfraction moyen est de 1,46.

Des plaques Ilford G5 de 100, 200, 400, 500 et 600  $\mu\text{m}$  d'épaisseur ont été irradiées au synchrotron du CERN par un faisceau de mésons  $\mu$  relativistes arrivant sous une incidence de  $70^\circ$  par rapport à la normale

---

\*) Un exposé, plus détaillé de ce travail paraîtra prochainement dans les comptes rendus du congrès de Photographie Nucléaire de Moscou, 1960.

de l'émulsion. Ces plaques ont été développées dans des conditions bien définies par le procédé ditherme habituel. A la fin du lavage, elles ont été introduites dans le Carbowax et la diminution de leur épaisseur par suite du séchage a été mesurée au microscope dans le liquide même. Le temps de séchage croît à peu près proportionnellement avec l'épaisseur nominale de l'émulsion et avec le poids moléculaire du Carbowax. Pour une plaque de  $600\text{ }\mu\text{m}$  et pour le Carbowax 400 par exemple, le séchage se fait en 15 heures environ. Le facteur de restitution dépend de l'épaisseur nominale et du poids moléculaire; le Carbowax 200 restitue entièrement les émulsions de  $100\text{ }\mu\text{m}$  et seulement à 70% celles de  $600\text{ }\mu\text{m}$ ; pour le Carbowax 400, les restitutions correspondantes sont respectivement de 60% et 45%. Un léger trouble peut apparaître dans les émulsions imprégnées de Carbowax 200 si l'humidité extérieure dépasse 60%. Remarquons qu'à épaisseur finale égale, l'émulsion séchée au Carbowax est plus rigide et moins hygroscopique que celle imprégnée de glycérol.

Nous avons procédé à des mesures comparatives de la distorsion des traces photographiques dans des émulsions de  $500\text{ }\mu\text{m}$  et de  $10 \times 5\text{ cm}$ , développées dans les mêmes conditions et séchées parallèlement dans des solutions de Carbowax, d'alcool, et dans une enceinte à humidité contrôlée. La distorsion de courbure a été déterminée par la méthode de MAJOR<sup>1)</sup> (objectif 65 x, oculaire 10 x). Les mesures ont été faites tous les centimètres sur l'ensemble de la plaque, en excluant une zone marginale de 1 cm de largeur. Les valeurs obtenues sont indiquées dans le tableau suivant:

Distorsion dans les plaques Ilford G5,  $500\text{ }\mu\text{m}$ , pour différentes méthodes de séchage

Procédés de séchage	Distorsion en $\mu\text{m} \pm 10\%$	Distorsion en covans $\pm 10\%$
Enceinte à humidité contrôlée . . . . .	8,3	132
Solution aqueuse d'alcool à 70% + 5% glycérine . . . . .	6,0	96
Solutions aqueuses d'alcool à 35%, 50%, 60% + 5% glycérine, 70% + 5% glycérine . . . . .	2,9	44
P. M. 200 . . . . .	6,5	104
Carbowax P. M. 300 . . . . .	10,7	172
P. M. 400 . . . . .	9,0	144
Solutions aqueuses de Carbowax 400 à 30%, 60% et 100% . . . . .	3,7	60

On voit que la distorsion la plus faible est obtenue lorsqu'on procède par étapes en éliminant progressivement l'eau de la couche photographique par immersion dans des solutions de Carbowax ou d'alcool de concentrations croissantes. Ces résultats nous encouragent à poursuivre la mise au point de cette nouvelle méthode de séchage.

Ce travail a bénéficié, pour une part, de l'appui financier de la Commission pour la Science Atomique du Fonds National Suisse.

*Référence bibliographique*

<sup>1)</sup> J. V. MAJOR, *Brit. J. Appl. Phys.* 3, 309 (1952).

**Corrélations angulaires bêta-gamma des cascades  
3<sup>-</sup>(β) 2<sup>+</sup>(γ) O<sup>+</sup> de l'Sb<sup>124</sup> et de l'Eu<sup>152</sup>**

par P. DEBRUNNER, M. LAMBERT, A. PONCINI et J. W. SUNIER  
(Laboratorium für Hochenergiephysik, E. P. F., Zurich)

Les transitions bêta interdites du premier ordre 3<sup>-</sup> → 2<sup>+</sup> de l'Sb<sup>124</sup> et de l'Eu<sup>152</sup> se caractérisent par une déviation sensible de la forme permise du spectre, liée à une valeur *ft* anormalement élevée. Il a été suggéré que ces déviations pourraient être attribuées à «l'effet d'une règle de sélection», qui réduirait la contribution des éléments de matrice nucléaires autres que l'élément  $\int B_{ij}$ , intervenant dans les transitions dites «uniques». ( $\Delta I = 2$ ,  $\Delta \Pi$  oui).<sup>1)</sup>

Sur la base de mesures de corrélations angulaires directionnelle bêta-gamma et bêta-gamma polarisés circulairement, une détermination univoque des 4 éléments de matrice

$$\eta x = -C_V \int \mathbf{r}, \quad \eta u = C_A \int i \boldsymbol{\sigma} x \mathbf{r}, \quad \eta \xi' y = -C_V \int i \boldsymbol{\alpha} \quad (\text{Rang } \lambda = 1)$$

$$\eta z = C_A \int B_{ij} \quad (\text{Rang } \lambda = 2)$$

intervenant dans ces transitions peut être tentée.

Nous avons mesuré la corrélation directionnelle des cascades 3<sup>-</sup>(2,31 MeVβ) 2<sup>+</sup>(0,603 MeVγ) O<sup>+</sup> de l'Sb<sup>124</sup> et 3<sup>-</sup>(1,48 MeVβ) 2<sup>+</sup>(0,344 MeVγ) O<sup>+</sup> de l'Eu<sup>152</sup>, en fonction de l'énergie des particules bêta. Le dispositif expérimental utilisé pour les mesures sur l'Sb<sup>124</sup> a été décrit précédemment<sup>2)</sup>. Les mesures sur l'Eu<sup>152</sup> ont été effectuées avec une nouvelle chambre à vide, présentée par la fig. 1.

La dépendance en énergie du coefficient  $A_2(W)$  de la fonction de corrélation  $N_{\beta\gamma}(W, \Theta) = 1 + A_2(W) P_2(\cos \Theta)$  est donnée par<sup>1)</sup>

$$A_2(W) = \frac{W^2 - 1}{W} \times \frac{R_3 + eW}{1 + aW + cW^2 + b/W}$$

où  $R_3$ ,  $e$ ,  $a$ ,  $c$ ,  $b$  sont des fonctions quadratiques des paramètres nucléaires  $x$ ,  $u$ ,  $\xi$ ,  $y$  et  $z$ . Par une méthode des moindres-carrés, les valeurs optima de ces paramètres ont été déterminées, compte tenu des conditions imposées par les mesures de la fonction de corrélation bêta-gamma polarisés circulairement effectuées pour l'Sb<sup>124</sup> par HARTWIG et SCHOPPER<sup>3)</sup> et pour l'Eu<sup>152</sup> par BERTHIER *et al.*<sup>4)</sup>.

Sur la base des valeurs  $ft$  corrigées, et en choisissant le système d'unités  $\hbar = m = c = 1$ , nous avons déterminé la valeur des éléments de matrice nucléaires, à partir des valeurs suivantes des constantes de couplage:  $C_V = (1,41 \pm 0,01) \cdot 10^{-49}$  erg/cm<sup>3</sup> et  $C_A = -1,25 C_V$ . La table présente les résultats, normalisés par rapport au rayon nucléaire  $R$  pour les éléments de dimension «longueur».

	Sb <sup>124</sup>	Eu <sup>152</sup>
$\overline{W}$ $A_2(\overline{W})$	4,3 m <sub>0</sub> c <sup>2</sup> - 0,350 ± 0,015	3,5 m <sub>0</sub> c <sup>2</sup> - 0,435 ± 0,015
log $f_c t$	10,6 ± 0,2	11,8 ± 0,2
$\left  \frac{\int B_{ij}}{R} \right $	(1,4 ± 0,3) 10 <sup>-2</sup>	(3,30 ± 0,50) 10 <sup>-3</sup>
$\left  \frac{\int r}{R} \right $	(0,2 ± 1,5) 10 <sup>-3</sup>	(2,5 ± 5,0) 10 <sup>-4</sup>
$\left  \frac{\int i \sigma x r}{R} \right $	(0,3 ± 1,3) 10 <sup>-3</sup>	(0,70 ± 2,0) 10 <sup>-4</sup>
$\left  \int i \alpha \right $	(0,7 ± 0,9) 10 <sup>-4</sup>	(0,75 ± 1,50) 10 <sup>-4</sup>

Ces valeurs sont en accord avec celles données par HARTWIG et SCHOPPER<sup>3)</sup> et STEFFEN<sup>5)</sup> pour l'Sb<sup>124</sup>, et avec nos précédentes mesures sur l'Eu<sup>152</sup><sup>2)</sup>. Les deux cas montrent clairement que la prédominance relative de l'élément  $\int B_{ij}$  peut caractériser l'effet d'une règle de sélection, comme KOTANI l'a proposé<sup>1)</sup>.

Une publication détaillée des mesures et des résultats fera l'objet d'un prochain article.



Corrélations angulaires  $\beta$ - $\gamma$ .  
Chambre à vide et détecteurs.

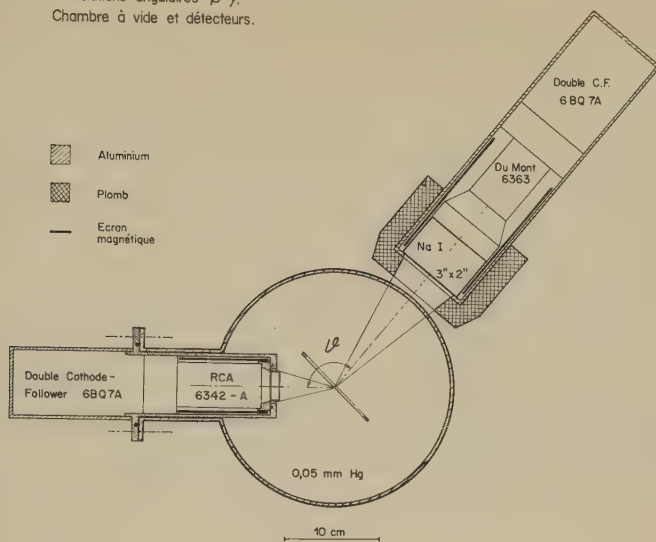


Fig. 1

### Bibliographie

- <sup>1)</sup> T. KOTANI, *Phys. Rev.* **114**, 795 (1959).
- <sup>2)</sup> J. W. SUNIER, P. DEBRUNNER et P. SCHERRER, *Nuclear Physics* **19**, 62 (1960).
- <sup>3)</sup> G. HARTWIG et H. SCHOPPER, *Phys. Rev. Letters* **4**, 293 (1960).
- <sup>4)</sup> J. BERTHIER *et al.*, *C. R. Acad. Sciences* (à paraître).
- <sup>5)</sup> R. M. STEFFEN, *Phys. Rev. Letters* **4**, 290 (1960).

### Methods of Target Preparation

by H. P. HÄNNI

(The Rice Institute, Houston, Tex.)\*)

Recently efforts have been made to gather the dispersed literature describing methods of target preparation. H. T. RICHARDS<sup>1)</sup> and J. H. COON<sup>2)</sup> discuss targets of nonradioactive material, W. PARKER *et al.*<sup>3)</sup> give a summary of methods in the preparation of radioactive materials on suitable supports. A great help for the study of properties of thin films is the 'classical' publication of H. MAYER<sup>4)</sup>. It depends on the experimental arrangement and the type of accelerator to choose the best procedure for target preparation and the geometry of the target.

\*) Now at SLM, Winterthur, Switzerland.

Often it is crucial to have a good target for realizing the success in the study of the nuclear reaction. For example, one expects the following conditions for a good target:

1. Satisfactory and constant yield during the experiment:

- a) The local heating of the target by the ion beam must not be so dangerous, that a part of it evaporizes in the vacuum or even has a hole burned into it.
- b) Chemical stability.
- c) Satisfactory tensile strength in pumping systems.
- d) Electrostatic charging of the target has to be avoided.

2. The thickness of the target and the thickness of the possible backing must not affect prohibitively the resolution of the measured spectrum.

The procedure of target preparation may be classified in the following way (in adding some new examples):

### 1. *Evaporation in a vacuum*

This is the best known procedure and is used in every institute. Mostly a backing or support (gold, tantalum, aluminium a. o.) carries the vacuum deposition. If one uses nickel and silver foils as backing it is possible after the evaporation to etch off the backing with an acid solution. Examples: SiO on Ni and Boron on Ag. The thickness of the target may be  $2 \text{ mg/cm}^2$ .

A favourite method is the evaporation of compounds on an organic backing like Formvar and Zapon. I used New Skin\*). One drop of New Skin spreads into a thin skin on the water surface. The skin has to be brought carefully onto an aluminium support with a circular opening, and dried about one day. On this New Skin Film it is possible to evaporate compounds in the evaporation plant up to a high melting point. In bombarding the target on New Skin with an ion beam, the local heating of the target burns up the New Skin Film, where the beam is hitting. Therefore we have a selfsupporting target. With this method I produced boron films of  $100 \text{ microgramm/cm}^2$  and less. I used a boat of graphite of the National Carbon Company with very little outgassing. The section of the boat is diminished in the centre in order to produce the highest temperature there. The maximum temperature was about  $2500^\circ \text{C}$  and the ends of the boat were covered with tungsten or tantalum electrodes (thickness about 10 micron) and embedded in watercooled copper electrodes.

---

\*) New Skin, Antiseptic covering, New Skin Co., Brooklin, New York.

## 2. Cathode sputtering

In a diluted atmosphere of a gas (for example  $H_2$ ) and a high D. C. Voltage between the sputtered cathode and the positive target backing, one produces a film on this backing by the incoming neutral atoms from the cathode. This procedure has great possibilities, for noble gases also. If noble or other inert gases are used as fillers it is possible to getter it in the electrodes. The same effect will be possible in the vapour plating procedure which is described in 4).

## 3. Electro Chemical Procedure

Electro plating is well known. Example: One Ni or Cu foil serves as negative electrode in chromic acid solution. After etching off the nickel or copper backing it is possible to obtain a selfsupporting chromium foil.

Similar types of procedures are the electrophoretic and the ion ejection, normally working with a nonconducting solution.

## 4. Vapour Plating

a) *Thermal Cracking*. Examples: Metal carbonyl can be cracked by heating with a tantalum or tungsten bridge. The same can be done with methyl iodide  $CH_3J$  and a carbon film is set on the hot bridge. Using a nickel foil (or other metal foils) as heater and varying the vapour pressure of methyl iodide it is possible to attain very thin carbon films after etching off the nickel backing. This procedure is described by KASHY *et al.*<sup>5)</sup>.

b) *Electrical discharge*. Instead of D. C. one can use A. C. to produce a glow discharge. The filling gas is ionized in a vycar glas chamber, it reacts with one electrode. Example:  $N^{14}$  and  $N^{15}$  gas reacting with a tantalum electrode and producing  $TaN^6$ ). Using water vapour as filling gas it is possible to produce metal oxide, if this metal is one electrode and the other electrode is placed on the top of the glas chamber.

c) *Adsorption, Gettering*. Heating in the gas chamber (induction heater) produces *Hydrides* (with deuterium and tritium gas) in Zr, Ti, Th, U, Pa as support and reacting material; *Nitrides* in Ta, Ti, Cr, Hf, U, Pa, Th as reacting material.

Another method of gettering is the oxydation of a metal foil (thorium-, tantalum-, tungsten-, aluminium- or nickel foil) in an atmosphere of oxygen or water vapour (corrosion) in an induction heater. Using water vapour of heavy water with enriched  $O^{18}$  (85%) from the Weizmann Institute it is possible to produce a target of about  $1\text{ mg/cm}^2\text{ }O^{18}$  starting

with a thorium foil of 10 to 20 micron thickness<sup>7)</sup>. We have studied the reactions  $O^{18}(p, n)F^{18}$ ;  $O^{18}(p, p')F^{18}$  and  $O^{18}(\alpha, n)Ne^{21}$ . The thorium oxide film on the thorium foil withstands a high temperature and is only sensitive to local heating of the alpha ion beam, 1 microampere of alpha beam is permissible.

### 5. *Electromagnetic isotope separation*

The target is produced on thin collecting foils, but the method is not very efficient.

### 6. *Mixing methods* (slurry technique, painting technique, lacquer suspension)

These methods are widely used but do not give great satisfaction. The homogeneity of the target is usually bad.

### 7. *Sintering method*

For the study of  $(d, p)$  and  $(d, n)$  reactions on  $B^{10}$  and  $B^{11}$  it was desirable to have selfsupporting boron targets of pure boron in the order of 10 mg/cm<sup>2</sup>. Boron powder of grain diameter of about 10 micron is pressed in a steel cylinder (matrice) by a pressure of about 1 t/cm<sup>2</sup> and more. The pressed sample has to have enough tensile strength, so that it can be handled easily in the induction heater. Under high vacuum or hydrogen atmosphere and 1300–1500° C temperature is the start of presintering. The boron foils are good for mechanical stress after cooling off and can be fixed in a target holder. With very fine metal powders of high filling volume it is possible to obtain foils of a thickness of about 5 mg/cm<sup>2</sup>.

The three following methods give self supporting boron foils in all desired thicknesses:

- a) Evaporation on New Skin: method 1) till 100 microgram/cm<sup>2</sup>
- b) Evaporation on metal foils: method 1) till 5 mg/cm<sup>2</sup>.
- c) Sintering: method 7) till 5 mg/cm<sup>2</sup>.

In reference <sup>1)</sup> and <sup>3)</sup> several methods of target thickness determination are described. I can therefore omit this problem.

*Acknowledgements:* I wish to express my thanks to Prof. T. W. BONNER, Chairman of the Department of Physics in The Rice Institute for his help and advice in treating the above problems during my stay in USA. Further I am thankful to Mr. and Mrs. Dr. J. FRÖHLICH, Winterthur.

*References*

- <sup>1)</sup> H. T. RICHARDS, Nuclear Spectroscopy *I*, 101-136, Ed. Fay Ajzenberg-Selove, 1960.
- <sup>2)</sup> J. H. COON, Fast Neutron Physics, Ed. J. B. Marion and J. L. Fowler, 1960.
- <sup>3)</sup> W. PARKER, M. DE CRÖES and K. SEVIER, JR., Nuclear Instruments and Methods, *7*, 22 (1960).
- <sup>4)</sup> H. MAYER, Physik dünner Schichten, 2. Bde., 1950.
- <sup>5)</sup> E. KASHY, R. R. PERRY, and J. R. RISSE, Nuclear Instruments and Methods *4*, 167 (1959).
- <sup>6)</sup> T. A. RABSON, M. S. THESIS, The Rice Institute, 1957.
- <sup>7)</sup> T. A. RABSON, T. W. BONNER, R. CASTILLO-BAHENA, M. V. HARLOW, JR., H. P. HAENNI, and W. A. RANKEN, 1960 (in press).

**Simulateur de contamination radioactive subséquente  
à une explosion atomique**

par R. L. FAVRE

(Laboratoire de Recherches Nucléaires, Lausanne)

L'étendue de cette communication nous contraint de la publier sous forme d'un article qui paraîtra prochainement dans la «Revue Militaire Suisse».

**Interactions électromagnétiques des électrons et positons  
de 620 MeV dans le propane <sup>a)</sup>**

par E. MALAMUD<sup>b)</sup> et R. WEILL<sup>c)</sup>

(Cornell University, Ithaca (N-Y))

Le faisceau  $\gamma$  du synchrotron de Cornell, d'énergie de pointe d'environ 1 GeV, traverse une cible de cuivre placée dans l'entrefer d'un spectrographe à paires. Les électrons produits dans la cible sont séparés d'après leur énergie. Un collimateur de  $1/2'' \times 3/4''$  situé 6 mètres plus loin, sélectionne un faisceau de  $780 \pm 10$  MeV qui pénètre dans une chambre à bulles à propane de 6'' diam. sur 4'' de profondeur à travers une paroi de duraluminium d'épaisseur correspondant à 0,3 longueur de rayonnement. Il suffit de renverser la direction du champ magné-

---

<sup>a)</sup> Financé partiellement par le programme commun de «l'Office of Naval Research» et de la «Commission Américaine pour l'Energie Atomique».

<sup>b)</sup> Nouvelle adresse: Laboratoire de recherches nucléaires, E. P. U. L., Lausanne (Suisse).

<sup>c)</sup> En congé du «Laboratoire de recherches nucléaires, E. P. U. L.».



tique du spectrographe à paires pour remplacer les électrons par des positons de même énergie.

La chambre (dont la description détaillée a été donnée ailleurs<sup>1)</sup>) est placée dans l'entrefer d'un aimant qui y maintient un champ de 7500 gauss. La température est de 64° C et la pression de fonctionnement de 440 p.s.i. Les trajectoires sont photographiées sur fond noir par une caméra stéréoscopique.

Le nombre d'événements observés est corrigé pour tenir compte de l'efficacité du dépouillement, trouvée égale à 98% après un deuxième dépouillement. La courbure des traces primaires étant de nature aléatoire (superposition de la courbure due à la diffusion multiple coulombienne à la courbure magnétique) une deuxième correction, fonction de la distance à l'entrée à laquelle un événement est observé, est aussi effectuée; sa valeur moyenne est d'environ 10%.

Les différentes interactions étudiées sont les suivantes:

1) *annihilation en vol des positons*:

Ce phénomène correspond à la disparition soudaine d'une trace sur un cliché. 45 événements (nombre non corrigé) ont été observés pour une longueur totale de 17920 cm de traces primaires. Cependant l'émission d'un photon de bremsstrahlung d'énergie pratiquement égale à celle du positon initial donnera lieu à un événement parasite de même aspect. Leur nombre a été déterminé à partir des deux événements du type annihilation trouvés sur les clichés d'électrons pour 9250 cm de trajectoires primaires.

La section efficace pour l'énergie de  $613 \pm 35$  MeV est la suivante:

$$\begin{aligned}\sigma_{\text{exp}} &= 1,34 \pm 0,24 \text{ mb/électrons;} \\ \sigma_{\text{th}} &= 1,42 \text{ (calculé d'après HEITLER}^2\text{)).}\end{aligned}$$

2) *Bremsstrahlung*:

Nous n'avons considéré que les émissions de photons de haute énergie, c'est-à-dire ceux pour lesquels  $v > 0,82$  avec  $v = k/E_0$ :  $k$  = énergie du photon,  $E_0$  énergie de l'électron ou du positon primaire.

Sur les clichés, ces événements se marquent sous la forme d'un brusque changement de courbure. Si l'énergie de l'électron ou du positon après le Bremsstrahlung est inférieure à une dizaine de MeV, sa trace s'arrêtera dans la chambre. L'énergie du photon se déduit de l'énergie de l'électron après le Bremsstrahlung, mesurée à partir de la courbure ou du parcours.

La section efficace différentielle de bremsstrahlung pour des valeurs de  $v$  variant de 0,03 entre  $v = 0,82$  à  $v = 1,00$  est donnée dans le tableau suivant, pour une longueur de 16188 cm de trace de positons et 8355 cm

de trace d'électrons. On a groupé les événements provenant des positons et des électrons

$v$	nombre corrigé d'événements $e^+ + e^-$	$\sigma$ exp	$\sigma$ th	$\frac{mb}{\text{mol C}_3\text{H}_8}$
0,82-0,85	53,2	43,6	50,1	
0,85-0,88	50,6	41,4	48,4	
0,88-0,91	56,0	45,8	46,2	
0,91-0,94	53,9	44,2	43,6	
0,94-0,97	50,7	41,4	39,9	
0,97-1,00	49,7	40,7	28,9	

Sections efficaces totales :

		Energie MeV	Nombre corrigé d'événements	$\sigma$ exp.	$\sigma$ th	$\frac{mb}{\text{mol C}_3\text{H}_8}$
$v > 0,82$	$e^+$	$613 \pm 13$	206,0	$256 \pm 16$	257	
	$e^-$	$640 \pm 18$	108,0	$260 \pm 24$		
	$e^+ + e^-$	$620 \pm 10$	370,0	$258 \pm 13$		

Les valeurs théoriques sont calculées par intégration du spectre de BETHE-HEITLER pour le carbone et l'hydrogène et du spectre de Wheeler-Lamb pour les électrons. L'accord entre la théorie et l'expérience est bon.

Signalons enfin que 34 collisions  $e^+ e^-$  avec  $v > 0,17$  et 21 collisions  $e^- e^-$  avec  $v > 0,19$  ont été observés. Les sections efficaces sont en accord avec celle donnée par BHABHA et MÖLLER respectivement, dans la limite de la précision statistique qui n'est que de 20%.

Une nouvelle irradiation a été effectuée, pour laquelle l'épaisseur de la fenêtre d'entrée a été ramenée à 0,08 longueur de rayonnement. 120.000 photos ont été prises, et les statistiques seront alors multipliées par 20. Le dépouillement est en cours.

Nous remercions M. Y. CHO de sa collaboration et Mme P. GRIFFITH pour son dépouillement consciencieux. L'un d'entre nous (R. W.) remercie la «Commission pour la Science Atomique du Fonds National Suisse» qui a financé son stage aux Etats-Unis.

Bibliographie

1) E. MALAMUD, Rapport non publié, Cornell 1960.  
2) W. HEITLER, Quantum theory of radiation, 3<sup>e</sup> édition; Oxford 1954, p. 270.

**Méthode de calcul d'un milieu multiplicateur hétérogène  
comprenant un faible nombre de cellules.**

par CH. MANDRIN, P. GAVIN, B. VITTOZ  
(Lausanne, E.P.U.L. Laboratoire de Génie Atomique)

Paraîtra probablement dans ZAMP.

**Corrosion des traces photographiques dans les émulsions  
nucléaires pendant le fixage\*)**

par L. PINTO HESPAÑHOL  
(Laboratoire de Recherches nucléaires, E.P.U.L., Lausanne)

La corrosion des traces photographiques nucléaires dans les émulsions Ilford G5, K5 et L4 de 600  $\mu$ m d'épaisseur a été étudiée en fonction de la durée du fixage, pour des bains de fixateur à différents pH et différentes températures. Les plaques photographiques ont été irradiées au synchrotron du CERN par des mésons  $\mu$  relativistes et développées dans des conditions bien définies par le procédé ditherme habituel. La composition du bain de fixage était la suivante:

thiosulfate de sodium 5 aq. . . . .	400 g/l
sulfate de sodium anhy. . . . .	10 g/l
acide acétique glacial . . . . .	$x$ cm <sup>3</sup> /l

$x$  variant de 0,5 à 25 cm<sup>3</sup> environ de façon à obtenir un pH compris entre 4 et 7. Le fixage était effectué dans un bac à écoulement laminaire, la hauteur du liquide au-dessus de l'émulsion étant de 4 centimètres. La concentration en argent provenant de l'émulsion à la fin du fixage était de l'ordre de 0,5 à 1 g par litre. L'action corrosive de ces bains a été suivie en mesurant la densité de lacunes des traces, la densité du voile, le diamètre des grains des traces et du voile.

Dans les émulsions G5 et K5 fixées à 5° C à pH 4 et 5 (pH adopté par beaucoup d'expérimentateurs) on observe une amorce de corrosion en surface de l'émulsion dès la fin de l'éclaircissement (55 heures pour pH = 5 et 120 heures pour pH = 4). Cette corrosion se propage dans toute l'épaisseur de l'émulsion et s'accroît avec la durée du séjour dans le fixateur; après le double du temps d'éclaircissement (temps de fixage habituel) la densité de lacunes des traces est réduite de 25% de sa valeur à la fin de l'éclaircissement. Pour un fixage effectué aux mêmes pH que

---

\*) Un travail plus détaillé sur ce sujet sera publié prochainement.

ci-dessus, mais à  $10^{\circ}\text{C}$  la corrosion est plus rapide et cette même réduction de densité de lacunes est obtenue déjà au bout de 4 jours; après 7 jours, les images sont corrodées à tel point que toute mesure devient impossible. Dans les émulsions du type L4, la corrosion est encore plus rapide que dans les G5 et K5, et après 6 jours de fixage à  $10^{\circ}\text{C}$  la plaque est inutilisable.

Par contre à  $\text{pH} = 6$  ( $x = 3,5\text{ cm}^3$  d'acide acétique), aussi bien à  $5^{\circ}$  qu'à  $10^{\circ}\text{C}$ , les émulsions G5, K5 et L4 ne présentent pas de corrosion appréciable, même après 15 jours de fixage. Après le double du temps d'éclaircissement, aucun trouble n'est décelable et l'étude des traces peut se faire dans de bonnes conditions.

Nous avons constaté que l'élévation du pH au-dessus de 6 est défavorable, car les temps de fixage ont tendance à s'allonger; et bien qu'on n'observe aucune corrosion, les plaques apparaissent troubles et plus ou moins voilées. Il en est de même pour des plaques fixées dans un bain à  $\text{pH} = 5$  auquel on a ajouté initialement 2 g par litre de bromure d'argent suivant la recommandation de certains auteurs<sup>1)</sup>.

Nous remercions la Commission pour la Science Atomique du Fonds National Suisse qui a financé ces recherches.

#### *Référence bibliographique*

- <sup>1)</sup> BRAUN, CORNIL et MEULEMANS, Comptes rendus du congrès international sur le rayonnement cosmique à Bagnères de Bigorre, juillet 1953, p. 61.

### **Interaction des muons de 0,2 à 1,3 GeV avec les électrons**

par A. HEYM

(Laboratoire de Recherches nucléaires, E.P.U.L., Lausanne)

A l'aide d'un hodoscope à coïncidences et anticoincidence déjà décrit <sup>1) 2)</sup>, nous avons poursuivi notre étude de l'interaction de choc des mésons  $\mu$  du rayonnement cosmique avec les électrons atomiques dans des écrans de plomb. L'énergie des mésons  $\mu$  sélectionnés était  $1620 \pm 40\text{ MeV}$  au haut de l'hodoscope et respectivement  $1320 \pm 40\text{ MeV}$ ,  $1020 \pm 40\text{ MeV}$ ;  $730 \pm 40\text{ MeV}$ ;  $450 \pm 40\text{ MeV}$  et  $260 \pm 40\text{ MeV}$  à la sortie des écrans de plomb successifs.

L'appareil a fonctionné dans cette géométrie pendant 1304 heures à la station scientifique du Jungfraujoch (alt. 3450 m) pour enregistrer le passage de 10200 mésons  $\mu$ . Dans 3402 de ces enregistrements, le méson  $\mu$  émerge de l'un des écrans de plomb accompagné par un ou plusieurs

électrons secondaires. En corrigeant les résultats expérimentaux bruts à l'aide de ceux d'un effet zéro mesuré pendant 486,5 heures et par un facteur tenant compte de la probabilité d'enregistrement des électrons par les compteurs Geiger-Müller, on calcule les pourcents expérimentaux cités dans la 2<sup>e</sup> colonne du tableau.

Energie du méson $\mu$ + 40 MeV	Pourcents expérimentaux	Pourcents théoriques
1320	$9,48 \pm 0,55\%$	11 %
1020	$8,97 \pm 0,6 \%$	9,75%
730	$7,29 \pm 0,5 \%$	8,10%
450	$5,67 \pm 0,4 \%$	5,95%
260	$3,76 \pm 0,27\%$	4,32%

Pour tester les prévisions théoriques, nous avons calculé ces mêmes pourcents à partir des sections efficaces de productions d'électrons Knock-on, de Bremsstrahlung et de création de paires<sup>3)</sup>. En tenant compte du spectre des mésons  $\mu$  dans le rayonnement cosmique et de l'énergie de ceux qui sont enregistrés par l'hodoscope, on peut montrer que l'incidence sur nos résultats des effets de Bremsstrahlung et de création de paires est négligeable par rapport à la production d'électrons Knock-on.

Pour obtenir les valeurs théoriques relatives à cette interaction, nous avons, dans une première étape, calculé à tous les niveaux de l'hodoscope la distribution énergétique des électrons de choc produits par les mésons  $\mu$  enregistrables.

Dans une deuxième étape, nous avons calculé la fraction des mésons  $\mu$  sortant d'un écran accompagnés par un ou plusieurs électrons, en tenant compte de la multiplication des électrons en gerbe électrophotonique dans le plomb.

Les résultats ainsi obtenus figurent dans la 3<sup>e</sup> colonne du tableau. La comparaison avec les résultats expérimentaux montre que l'accord est satisfaisant, compte tenu des erreurs statistiques d'une part et de l'imprécision d'environ 10% des résultats théoriques entraînée par l'emploi d'approximations dans la théorie des gerbes électrophotoniques.

Une publication complète sera prochainement faite.

Nous exprimons notre gratitude à la Commission pour la Science atomique du Fonds National suisse de la recherche scientifique qui a subventionné cette recherche et nous sommes reconnaissants de la précieuse collaboration dont nous avons bénéficié à la Station Scientifique du Jungfraujoeh.



*Bibliographie*

- <sup>1)</sup> A. HEYM, M. BIASUTTI et CH. HAENNY, *Helv. Phys. Acta* **29**, 435 (1956).
- <sup>2)</sup> R. FAVRE, *Helv. Phys. Acta* **24**, 599 (1951), **27**, 235 (1954).
- <sup>3)</sup> B. ROSSI, *High-Energy Particles*, Prentice-Hall, New York, 1952, p. 16; BHABHA, MASSEY et CORBEN; p. 61: CHRISTY et KUSAKA; p. 87: BHABHA.

**Total neutron cross sections for intermediate nuclei around 4 MeV**

by R. RICAMO

(Istituto di Fisica – Università di Catania (Italy))

As pointed out by RAINWATER<sup>1)</sup> the potential well of the optical model should depend on  $A$  also according to the requirements of the shell model, but presently the optical model allows to describe for instance only the average behaviour of the total neutron cross section as a function of the nuclear mass number  $A$ .

We decided therefore to study more carefully the region  $20 < A < 40$  where there was not a good fit of the optical model predictions with the few experimental data available especially around 4 MeV<sup>2)</sup>.

We compared at first the existing total neutron cross section data at 3; 4 and 5 MeV with the binding energy of the last neutron in the compound nuclei and observed some regularities. But as the total cross sections were not measured with the same accuracy and the observed effect was small, we preferred to do the measurements once more.

We started measuring the total neutron cross sections for Phosphorus and Sulphur following the well known transmission technique<sup>3)4)</sup>, with good geometry, using monoenergetic neutrons in the 3 to 5 MeV energy range. Neutrons were produced by the  $D(d,n)^3\text{He}$  reaction, accelerating deuterons with a 2 MeV HVEC VAN DE GRAAFF against an heavy water ice target. The neutron energy was varied by choosing neutrons emitted at various angles from the direction of deuterons incident on the target. As neutron detector we used a Hornyak scintillator.

The complete results of our measurements done with good resolution (30 to 70 keV) will be published later, here we are only interested in the mean values of the total cross section at 3; 4 and 5 MeV which are to be seen in the figure. The total cross section of  $P$  at 4 and 5 MeV is higher than that of  $S$  as the absolute value of the binding energy of the last neutron in the compound nucleus is smaller for  $P$ .

New total cross section measurements are to be made for the other doublets  $Al-Si$  and  $Na-Mg$  but these are to be done carefully as the suspected oscillations of the total cross sections are less than 10%.

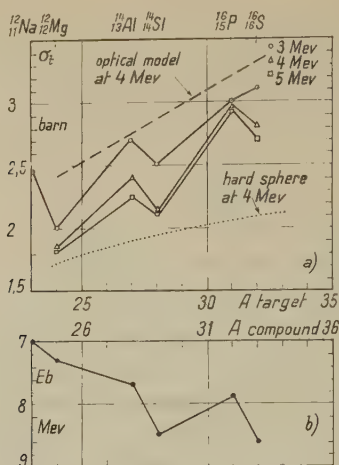


Fig. 1

- a) Experimental total cross sections for 3; 4 and 5 MeV neutrons as a function of  $A$  (full line) and total cross section for the potential scattering from a hard sphere for 4 MeV neutrons (dotted line), and calculated with the optical model (dashed line)<sup>2)</sup>.
- b) Binding energies of the last neutron in the compound nuclei.

#### References

- 1) J. RAINWATER, Handbuch der Physik, S. Flügge, Vol. XL, p. 422.
- 2) F. BJORKLUND, S. FERNBACH, Phys. Rev. 109, 1295 (1958).
- 3) R. RICAMO, Nuovo Cimento 8, 383 (1951).
- 4) R. MEIER, R. RICAMO, P. SCHERRER und W. ZÜNTI, Helv. Phys. Acta 26, 451 (1953).

### Restwiderstand von Gallium und Gallium-Legierungen

VON T. FREDERKING

(Institut für kalorische Apparate und Kältetechnik ETH, Zürich)

R. REIMANN

(Forschungsinstitut Aluminium-Industrie-AG, Neuhausen)

Der Restwiderstand (spezifischer elektrischer Widerstand bei 0 °K) von reinen Metallen wird durch geringe Zusätze von Fremdatomen, die spektroskopisch höchstens qualitativ nachweisbar sind, immer noch stark verändert. Durch dessen Messung können daher auch kleinste Konzentrationen von Verunreinigungen quantitativ erfasst werden,

sofern die Beiträge anderer Einflüsse (wie z. B. Gitterfehlstellen) vernachlässigbar klein sind. Im folgenden wird auf Resultate von Messungen an Reingallium (Schmelzpunkt 29,75 °C), das für Halbleiter verwendet wird und Verunreinigungen unter oder bei 1 ppm hat, und Gallium-Legierungen eingegangen.

Als Proben dienten gegossene Drähte, die – besonders bei niedrigem Restwiderstand – möglichst spannungsfrei befestigt waren. Der Durchmesser der Reingalliumdrähte wurde variiert, da bei sehr niedrigem Restwiderstand die mittlere freie Weglänge der Elektronen mit der Drahtdicke vergleichbar wird und infolgedessen eine Widerstandserhöhung eintritt (Weglängeneffekt). Die Herstellung der Legierungen (Drahtdurchmesser 1 mm) aus Gallium der Halbleiterqualität sowie aus Reinstmetallen von JOHNSON-MATTHEY erfolgte durch Zusammenschmelzen in einem Vakuum von ca. 10<sup>-2</sup> mm Hg. Mit Ausnahme der Legierungen mit Aluminium und Indium, wo ohne weiteres je ca. 1% zulegiert werden konnte, zeigte es sich, dass die Löslichkeit der untersuchten Elemente in Gallium zum Teil sehr gering ist, so dass die vorgesehenen 0,1% bei weitem nicht gelöst werden konnten. Dies trifft insbesondere für Magnesium und Silizium zu. Auf diese Erscheinung soll gelegentlich an anderer Stelle eingegangen werden.

In Figur 1 lassen einige an Reingallium-Drähten erhaltene Resultate den Weglängeneffekt deutlich hervortreten. Vergleicht man die beiden Drähte unter 1 mm Ø, so sieht man beim dünnsten Draht eine ähnliche

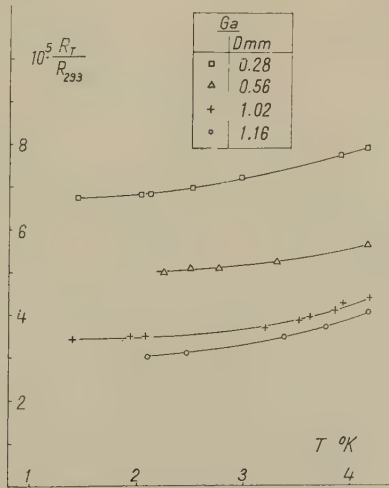


Fig. 1

Widerstandsverhältnis von Reingallium-Drähten als Funktion der Temperatur

Abweichung von der Matthiessenschen Regel, wie sie von OLSEN<sup>1)</sup> an hochreinen dünnen Indium-Drähten gefunden und von LÜTHI und WYDER<sup>2)</sup> gerechnet wurde. (Eine Aussage über die dickeren Drähte ist infolge ungenügender Messgenauigkeit nicht möglich.) Nach NORDHEIM<sup>3)</sup> ist die relative Widerstandserhöhung dünner Drähte bei Annahme diffuser Reflexion der Elektronen an der Metallwand näherungsweise gleich dem Produkt aus der mittleren freien Weglänge  $l$  und dem reziproken Durchmesser

$$(\varrho - \varrho_b)/\varrho_b = l/D \quad (1)$$

( $\varrho_b$  spezifischer Widerstand des unendlich ausgedehnten Metalls (Blockmaterial)). In Fig. 2 ist eine dementsprechende ausgleichende Gerade eingezeichnet, wobei das Restwiderstandsverhältnis der verschiedenen Drähte durch Extrapolation des Widerstandsverhältnisses nach Fig. 1 auf 0° K erhalten wurde. Die Streuungen in Fig. 2 dürften durch den unterschiedlichen Gehalt an Verunreinigungen bedingt sein und sich bei der Herstellung durch Giessen kaum vermeiden lassen. Die Gerade der Fig. 2 liefert ein Restwiderstandsverhältnis des Blockmaterials von etwa  $1,5 \cdot 10^{-5}$  und eine mittlere freie Weglänge  $l \approx 1,2$  mm, d. h. von der Größenordnung des Durchmessers.

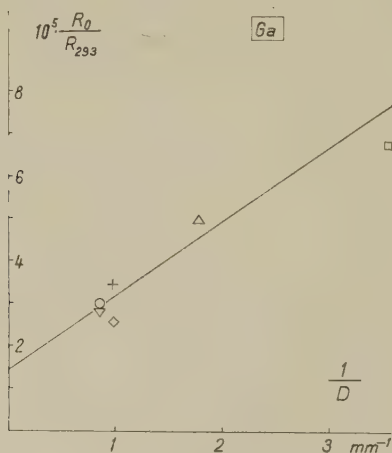


Fig. 2

Restwiderstandsverhältnis von Reingallium-Drähten in Abhängigkeit vom reziproken Durchmesser

Rückschlüsse auf Anisotropieeffekte – der spezifische Zimmertemperaturwiderstand des Galliums liegt zwischen 8 und 55  $\mu\Omega$  cm<sup>4)</sup> –

können aus diesen wenigen orientierenden Messungen nur bedingt gezogen werden, doch deuten die Resultate daraufhin, dass das Restwiderstands*verhältnis* bei konstant gehaltenen übrigen Grössen unabhängig von der Kristallrichtung ist. Der spezifische Widerstand bei 0° K wäre damit proportional dem spezifischen Zimmertemperaturwiderstand. Trotz unzureichender Beschreibung des anisotropen Metalls gibt das Sommerfeldsche Modell freier Elektronen einen Hinweis auf die elektronischen Eigenschaften. Mit

$$\varrho_b \cdot l = \left( \frac{3}{8\pi} \right)^{1/3} \cdot \frac{h}{e^2} \cdot n^{-2/3} \tag{2}$$

(*n* Zahl der freien Elektronen je Volumeneinheit, *e* elektrische Elementarladung, *h* Plancksches Wirkungsquantum) erhält man bei Einsetzen des mittleren Zimmertemperaturwiderstandes unserer Drähte von rund 20 μΩ cm (kleinster bzw. grösster Wert: ca. 10 bzw. 40 μΩ cm)  $\varrho_b \cdot l \approx 3,5 \cdot 10^{-11} \Omega \text{ cm}^2$  und einen Anteil freier Elektronen je Atom von rund 0,1 (bzw. 0,4 und 0,05).

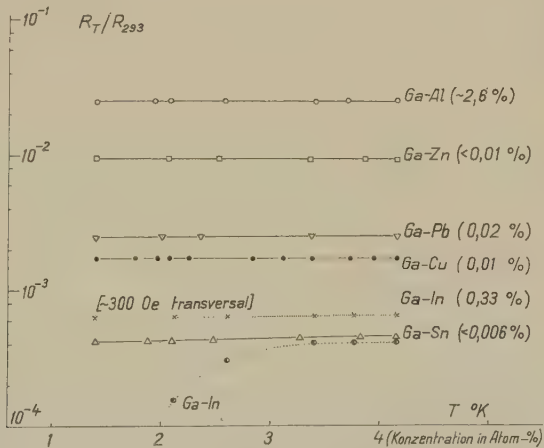


Fig. 3

Widerstandsverhältnis von Galliumlegierungen als Funktion der Temperatur

Die Ergebnisse an Galliumlegierungen (Fig. 3) lassen im untersuchten Temperaturbereich keine groben Abweichungen von der Matthiessenschen Regel erkennen. Bei der Ga-In-Legierung nahm der Widerstand unterhalb 3° K infolge des Einsetzens von Supraleitung ab, war jedoch im überkritischen transversalen Magnetfeld nahezu unabhängig von der Temperatur. Soweit aus unseren Messungen hervorgeht, bleibt der anisotrope Charakter des Galliums bei diesen verdünnten Legierungen



erhalten. Nach LINDE<sup>5)</sup> ist die Widerstandszunahme je Atom-%  $\Delta\rho/c$  bei Hinzulegieren eines anderen Elements zu einwertigen Metallen von dem Quadrat der Wertigkeitsdifferenz  $Z$  der beiden Elemente abhängig:

$$\Delta\rho/c = a + b Z^2 ; \quad a, b \text{ Konstante} \quad (3)$$

Die bis jetzt vorliegenden Resultate lassen noch keine klaren Rückschlüsse auf Abweichungen von Lindes Regel zu, ausserdem hängt bei richtungsunabhängigem Restwiderstandsverhältnis die Widerstandszunahme von der Kristallrichtung ab. Trotzdem ist es nunmehr möglich, für den Bereich der untersuchten Legierungen mit zahlenmässig bekannter Konzentration aus der Restwiderstandsmessung einer unbekannten Probe die ungefähre Maximalkonzentration des Begleitelementes anzugeben.

#### *Literatur*

- 1) J. L. OLSEN, *Helv. Phys. Acta* **31**, 713 (1958).
- 2) B. LÜTHI, P. WYDER, *Helv. Phys. Acta* **33**, 667 (1960).
- 3) L. NORDHEIM, *Act. Sci. et Ind.* No. 131, Paris 1934.
- 4) M. OLSEN-BÄR und R. W. POWELL, *Proc. Roy. Soc. A* **209**, 542 (1951).
- 5) J. O. LINDE, *Ann. Phys.* [5] **70**, 52 (1931); [5] **75**, 219 (1932).

### **Susceptibilité magnétique du Se et du Te entre 80° K et 1300° K**

par M. RISI et S. YUAN

(Laboratoire de Physique des Solides E. P. F. Zurich)

Le sélénium est semiconducteur tant à l'état solide qu'à l'état liquide, tandis que le tellure montre un caractère légèrement métallique dans sa phase liquide<sup>1)</sup>. De plus, à l'état liquide, ces deux éléments ont une structure en chaînes<sup>2)</sup> de longueur variable<sup>3)</sup>. Le Se et le Te nous permettent donc d'étudier d'abord le comportement de la susceptibilité magnétique lors des transitions semiconducteur-semiconducteur et semiconducteur-«métal», et deuxièmement, l'influence possible de la longueur ou de la structure des chaînes sur la susceptibilité.

#### *Susceptibilité du Se pur*

A l'état liquide, le Se est diamagnétique et sa susceptibilité diminue d'environ 20% entre son point de fusion et son point d'ébullition (Fig. 1). L'équation de la courbe a été déterminée par BUSCH et VOGT<sup>4)</sup>. A l'état solide, nous obtenons trois valeurs légèrement différentes de la suscep-

tibilité selon le traitement thermique qu'a subi l'échantillon. Les valeurs par  $\text{cm}^3$ , à  $300^\circ\text{K}$ , sont  $-12,6 \times 10^{-7}$ ,  $-13,4 \times 10^{-7}$  et  $-14,1 \times 10^{-7}$ , et correspondent respectivement à des échantillons ayant une structure prédominante hexagonale, amorphe et monoclinique. Dans les trois cas, la susceptibilité est indépendante de la température.

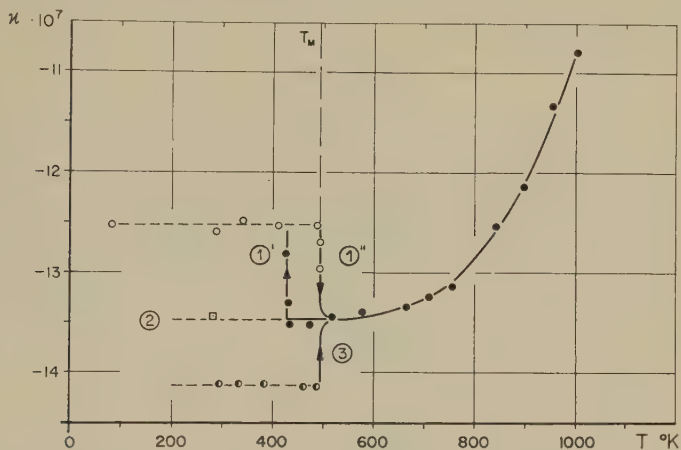


Fig. 1

Susceptibilité par unité de volume  $\chi$  du Se solide (polycristallin) et liquide.

- Solide {  $\circ$  : refroidi lentement à partir de  $T_M$  ①' et de nouveau chauffé ①".  
 $\square$  : refroidi brusquement de  $T_M$  à  $280^\circ\text{K}$ .  
 $\bullet$  : recuit à  $450^\circ\text{K}$  avant les mesures.  
 Liquide :  $\bullet$  : communs.

### *Susceptibilité du Te pur*

A l'état solide, le Te est diamagnétique et sa susceptibilité varie très peu avec la température (Fig. 2). A  $300^\circ\text{K}$ , elle est de  $-18,0 \times 10^{-7}$ . Au point de fusion, la susceptibilité diminue brusquement de  $-15,2 \times 10^{-7}$  à  $-7,67 \times 10^{-7}$ ; à l'état liquide, elle continue à diminuer pour devenir finalement paramagnétique à  $980^\circ\text{K}$  et atteindre la valeur de  $+2,6 \times 10^{-7}$  à  $1286^\circ\text{K}$ .

### *Susceptibilité du Se contenant des impuretés halogènes*

La variation de  $\chi$  du Se liquide en fonction de la température ne peut s'expliquer uniquement par la variation de la densité<sup>4)</sup>.

Le Se étant bivalent, il devrait exister à chaque extrémité des chaînes un électron à spin non-compensé; la rupture des chaînes due à l'augmentation de la température, et par suite, l'augmentation du nombre de ces électrons à spin libre pourrait expliquer en partie la variation du diamagnétisme du Se liquide en fonction de la température. Pour tenter de

vérifier cette hypothèse, nous avons introduit, sous vide ou sous pression, dans les échantillons de Se pur des impuretés de chlore, de brome ou d'iode, à des concentrations variées, espérant provoquer une saturation des spins libres.

L'introduction de ces impuretés n'a malheureusement produit aucun effet sur la variation de la susceptibilité. Il semble, d'après certains de nos résultats expérimentaux, que les halogènes ne se fixent pas dans le Se liquide.

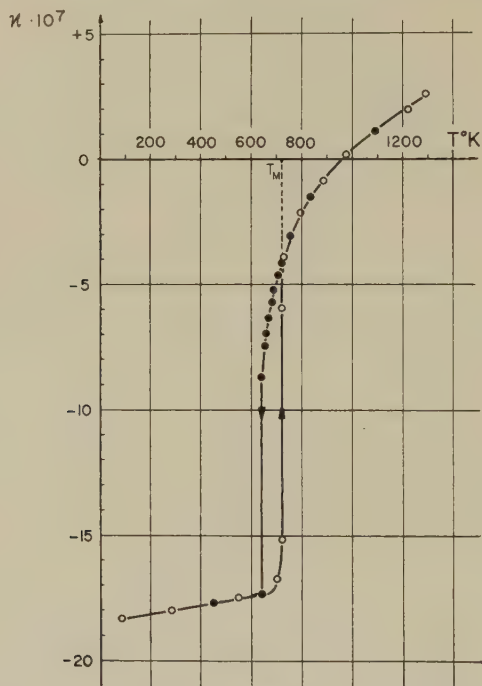


Fig. 2

Susceptibilité par unité de volume  $\chi$  du Te solide (polycristallin) et liquide

### *Susceptibilité du Se contenant du Te et du S*

Si nous remarquons que le S, le Se et le Te sont trois éléments qui, à l'état liquide, existent sous forme de chaînes de différente longueur, nous voyons l'intérêt qu'il pourrait y avoir à étudier, à une température donnée, la variation de la susceptibilité en fonction de la longueur possible des chaînes dans ces alliages mixtes. Dans les alliages Se-Te, nous trouvons des chaînes mixtes, c'est-à-dire, des chaînes où il y a à la fois des atomes de Se et de Te<sup>5)</sup>; nous pouvons faire une hypothèse semblable pour les alliages Se-S.

La susceptibilité du Se contenant jusqu'à 20% de Te varie approximativement comme celle du Se pur, tandis qu'elle varie comme celle du Te pur pour les alliages contenant plus de 50% de Te. Quant à la susceptibilité du Se contenant jusqu'à 50% de S, elle varie comme celle du Se pur. Il faut remarquer cependant que la valeur absolue de la susceptibilité varie légèrement d'un échantillon à l'autre.

### *Conclusion*

Cet étude de la susceptibilité du Se et du Te nous a permis de déterminer sa variation en fonction de la température; de plus, nous constatons qu'une transition semiconducteur-semiconducteur s'accompagne d'un changement de la susceptibilité beaucoup plus faible que celui d'une transition semiconducteur-«métal». Même si nous n'avons pu déterminer quantitativement quelle est l'influence de la structure et de la longueur des chaînes sur la variation de la susceptibilité magnétique, nous obtenons des résultats qualitativement compréhensibles.

### *Literatur*

- 1) A. S. EPSTEIN, H. FRITSCH, K. LARK-HOROVITZ, P. R. 107, 412, 1957.
- 2) A. R. VON HIPPEL, J. Chem. Phys. 16, 372, 1948.
- 3) H. KREBS, W. MARSCH, Z. anorg. Chem. 263, 305, 1950.
- 4) G. BUSCH, O. VOGT, H. P. A. 30, 224, 1957.
- 5) E. GRISON, Technical Report XXXVIII, M. I. T.

## **Zum Meissner-Effekt in supraleitenden Hohlzylindern**

VON H. THOMAS UND R. SOMMERHALDER  
(Zürich, IBM lab.)

Wird als ausführliche Arbeit in der Helvetica Physica Acta erscheinen.

## **Zur Weglängentheorie der elektrischen Leitfähigkeit in Metallen**

VON H. THOMAS  
(Zürich, IBM lab.)

Wird als ausführliche Arbeit in der Helvetica Physica Acta erscheinen.

**Experimente mit einer Ionenquelle für polarierte Deuteronen**

H. R. STRIEBEL, H. RUDIN, P. HUBER, L. BROWN, E. BAUMGARTNER  
(Basel, Univ. Phys. Inst.)

Erscheint demnächst

**Développement automatique des émulsions nucléaires**

C. A. BOVET et E. JEANNET  
(Inst. Phys. Neuchâtel)

Un appareil entièrement automatique a été construit pour le développement des émulsions nucléaires. Sa capacité est de  $5 \text{ dm}^2$  d'émulsion avec une utilisation de  $1 \text{ dm}^3$  de produit chimique. Le remplacement ou la dilution des bains, les changements de température et sa stabilisation sont commandés par un système de programme sur bande transparente et au moyen d'une matrice de connexion. Ce système présente une grande souplesse et une parfaite sécurité.

L'homogénéité du développement par stade chaud humide ainsi que sa reproductibilité à 1% ont été testées.

Une description détaillée a été soumise pour publication dans Rev. Sci. Instrum.



## Resistivity of Thin Metallic Wires\*)

von **F. J. Blatt** and **H. G. Satz\*\*)**

Michigan State University, East Lansing, Michigan

*Abstract.* Measurements by OLSEN on thin indium wires have demonstrated that not only the residual but also the temperature dependent part of the resistivity increases with decreasing wire diameter. It was suggested by OLSEN that small angle electron-phonon scattering may account for the observed effect by scattering electrons to the surface where they suffer diffuse reflection.

Since an exact solution of the transport equation, taking account of such phonon-surface scattering events, is beset with mathematical difficulties we have considered the problem using basically the same elementary approach as employed by Nordheim. We find that Olsen's mechanism leads to an additional resistivity given by

$$\varrho_{ps} = (2\pi)^{1/3} (mv_F/ne^2)^{2/3} (T/\theta_D)^{2/3} [\varrho_i^N(T)]^{1/3} (r)^{-2/3}; \quad r \ll l.$$

Here  $v_F$  is the velocity at the Fermi energy and  $\varrho_i^N(T)$  is the ideal resistivity due to Normal phonon scattering only. This expression is valid only if  $r$ , the wire radius, is less than the electron mean free path,  $l$ , in the bulk material.

The above expression is in reasonable agreement, qualitatively and quantitatively, with Olsen's results and, within the range of validity, also accounts for Andrew's observations. It is suggested that careful measurements on thin wires may allow an experimental separation at low temperatures between the ideal resistivities due to Normal and to Umklapp processes.

### I. Introduction

The resistivities of thin films and wires are known to differ appreciably from the bulk resistivities whenever the physical dimensions of the specimen become comparable to or smaller than the electronic mean free path (m. f. p.) in the bulk. The additional resistivity arises from scattering of electrons at the external surfaces of the sample, and theory has shown that careful measurements of the resistivity of wires as a function of diameter should allow a direct determination of the mean free path and may also shed light on the nature of the scattering process at the surface.

The earliest theories<sup>1)2)</sup> of the size effect were based on rather elementary m. f. p. concepts. Subsequently, FUCHS<sup>3)</sup> and DINGLE<sup>4)</sup> con-

\*) Supported in part by the U.S.A.F. Office of Scientific Research.

\*\*) Present address: Physikalisches Staatsinstitut, Hamburg (Germany).

sidered the resistivities of thin metallic films and of wires of circular cross section in a more satisfactory way. In their theories the surfaces play the role of boundary conditions imposed on the solution of the Boltzmann equation.

The expression for the resistivity of a thin wire derived by DINGLE cannot be reduced to analytic form in the general case. However, numerical evaluation shows that this 'exact' result differs from Nordheim's approximate expression

$$\varrho_w = \varrho_b + \alpha(\varrho_b l/d) \quad (1)$$

by no more than 5% over the entire range  $0 < l/d \leq \infty$ . Here  $\varrho_w$  is the resistivity of the wire,  $\varrho_b$  the resistivity of the substance in bulk,  $l$  is the bulk m. f. p. and  $d$  is the diameter of the wire. The factor  $\alpha$  in Equation (1) depends on the nature of the scattering process at the surface. If reflection at the surface is specular  $\alpha = 0$ , if it is diffuse  $\alpha = 1$ . Experimental results indicate diffuse reflection for most metals<sup>5)6)</sup>. (BISMUTH<sup>7)</sup> plays its perennial role of exception to the rule.) We shall set  $\alpha = 1$  in all subsequent expressions.

The striking prediction of Equation (1) is that, to the conduction electrons in a thin wire, the external surfaces play the same role as impurities, resulting in a temperature independent residual resistivity

$$\varrho_s = \varrho_b l/d. \quad (2)$$

We recall here that

$$A \equiv \varrho_b l = mv_F/ne^2 \quad (3)$$

is practically temperature independent. Thus we may write for the resistivity of a thin wire

$$\varrho_w = \varrho_i(T) + \varrho_0 + \varrho_s \quad (4)$$

where  $\varrho_i(T)$  is the ideal,  $\varrho_0$  the residual resistivity of the bulk material.

According to Equations (2) and (4) Matthiessen's rule applies, and consequently the *temperature dependent* part of the resistivity of a thin wire should be the same as that of a bulk sample. Recent measurements by OLSEN<sup>8)</sup> have shown that such is not the case. In Figure 1 we display Olsen's results so as to focus attention on the failure of Matthiessen's rule. We have plotted there the difference  $\varrho_w(T) - \varrho_w(0)$ . If Equation (4) were valid all the curves should overlap. Instead, the apparent ideal resistivity of the thinner indium wires is considerably greater than that of those of larger diameter, the difference exceeding by far the 5% error attributable to the use of the approximate relation, Equation (1). A similar discrepancy between theory and experiment, noted by ANDREW<sup>9)</sup>, was dismissed

by DINGLE<sup>4</sup>) who attributed it to differences in the method of preparation of the very thin and somewhat thicker mercury wires. Some of Andrew's results are shown in Figure 2, where, again, we are plotting the difference  $\rho_W(T) - \rho_W(0)$ . In view of OLSEN's work, Andrew's data on the thinner wires deserve reexamination.

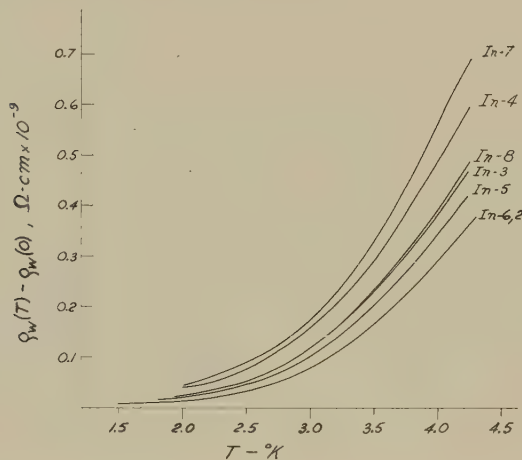


Fig. 1

The temperature dependent part of the resistivity of indium wires, as determined by OLSEN. The sample specifications are given as

Specimen	Source	diameter, mm
In - 2	JOHNSON-MATTHEY	2.0
In - 3	Tadanac Brand	0.311
In - 4	Tadanac Brand	0.086
In - 5	Tadanac Brand	0.57
In - 6	Tadanac Brand	2.54
In - 7	JOHNSON-MATTHEY	0.06
In - 8	JOHNSON-MATTHEY	0.20

OLSEN suggested the following mechanism which might account for the enhanced temperature dependence of the resistivity of thin wires. In the bulk, electron-phonon scattering of the Normal type (non-Umklapp) can scatter electrons at low temperatures only through rather small angles  $\theta$ , where

$$\theta \leq \theta_{\max} \simeq (T/\theta_D) (K_B/k_F).$$

Here  $K_B$  is the radius of the Brillouin Zone in the spherical approximation (i. e.  $K_B$  is the wave vector of an acoustical phonon of energy  $k\theta_D$ ) and  $k_F$  is the wave vector of an electron at the Fermi surface. For most

metals (omitting from consideration here Bismuth and similarly misbehaved semi-metals)  $(K_B/k_F) \sim 1$ , and we then have

$$\theta \leq \theta_{\max} \simeq T/\theta_D \quad (5)$$

At low temperatures randomizing of linear momentum by normal electron-phonon scattering requires a large number of electron-phonon collisions, and consequently the effective m. f. p. is rather long. In a thin wire the electrons which, in a given small interval of time, are primarily responsible for the flow of charge are those whose momentum is very nearly parallel to the wire axis. All other electrons must shortly reach the surface and there suffer diffuse reflection. Electrons moving along the wire axis in a thin wire are, however, far more susceptible to small angle phonon scattering than are electrons in the bulk. A few small angle events may deflect such an electron sufficiently to bring it to the surface where, though on impact it is still moving largely in the 'forward direction', it suffers diffuse reflection and loses all memory of its past history. Thus, the presence of the surface greatly enhances the effectiveness of small angle phonon scattering, particularly as it limits the m.f.p. of those electrons which, at any instant of time, are the important charge carriers.

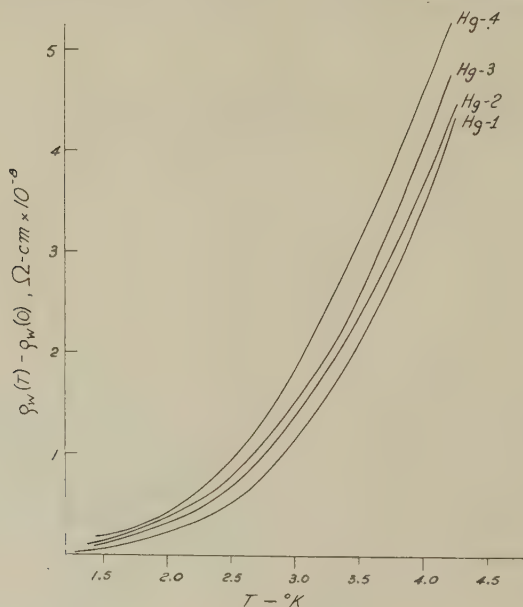


Fig. 2

The temperature dependent part of the resistivity of mercury wires, as determined by ANDREW. The wire diameters are Hg-1,  $d = 0.79$  mm; Hg-2,  $d = 0.0166$  mm; Hg-3,  $d = 0.0105$  mm; Hg-4,  $d = 0.0061$  mm.

In the following we shall demonstrate that this suggestion of OLSEN has considerable merit and would seem to account quite well for the observed resistivities. Our primary aim has been to lend semiquantitative justification to Olsen's mechanism. To do this and maintain a clear physical picture throughout we have deliberately turned back the clock and have resorted to a most elementary approach akin to that of Nordheim. The success of that line of reasoning in heralding the results of DINGLE allows perhaps some optimism. We make, however, no claims of accuracy or rigour.

The extension of Dingle's treatment so as to include within its framework Olsen's mechanism is beset with severe mathematical difficulties. Since much available data has been obtained on polyvalent metals whose Fermi surfaces surely deviate radically from the spherical form assumed by FUCHS and DINGLE, further refinements of that theory should probably aim at removing this restriction. After that has been accomplished additional complicating mechanisms might be introduced. What we believe to have shown is that Olsen's mechanism must ultimately be included in any careful theory.

## II. Estimate of Olsen's Resistivity Mechanism

The dominant resistivity mechanisms in thin wires are:

- 1) Bulk mechanisms; (a) impurity scattering - m.f.p. =  $l_0$   
                               (b) phonon scattering - m.f.p. =  $l_i$ .
- 2) Surface mechanisms; (a) direct surface scattering - m.f.p. =  $l_s$   
                               (b) phonon-surface scattering - m.f.p. =  $l_{ps}$ .

We assume *ad hoc* that the following is valid

$$\frac{1}{l_W} = \frac{1}{l_0} + \frac{1}{l_i} + \frac{1}{l_s} + \frac{1}{l_{ps}} \quad (6)$$

It is patently obvious that Equation (6) cannot be correct. Quite apart from the usual criticisms that are leveled against Matthiessen's rule, we note that mechanism 2b is not statistically independent of mechanisms 1b and 2a. But, as we remarked before, we lay no claim to rigour here.

We concern ourselves now with the calculation of  $l_{ps}$  and restrict the discussion to the limit  $l_i \gg r$ . We assume that the differential scattering cross section for phonon scattering is a constant for  $0 < \theta \leq \theta_{\max} = T/\theta_D$ , and is zero for  $\theta > \theta_{\max}$ . If we neglect Umklapp processes then  $a$ , the average distance traveled between phonon collisions can be related to the bulk resistivity as follows



$$\left. \begin{aligned} \varphi_i(T) &= (mv_F/nc^2) (1/a) \langle 1 - \cos\theta \rangle \\ &= (A/4a) (T/\theta_D)^2; \quad T \ll \theta_D \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

Thus we obtain

$$a = [A/4 \varrho_i(T)] (T/\theta_D)^2 \quad (8)$$

Consider now an electron moving initially along the wire axis. The probability that this electron reaches the surface through multiple small angle scattering after having traversed a distance  $\bar{x}$  along the wire is given by<sup>10)</sup>

$$H(\bar{x}) = (3/4 \pi)^{1/2} w(\bar{x})^{-3/2} \exp \left[ -\frac{3}{4} w^2 r^2 (\bar{x})^{-3} \right] \quad (9)$$

where

$$w = [2 a/\pi \theta_{\max}^4]^{1/2}.$$

We now define  $l_{ps}$  as that distance  $\bar{x}_0$  for which the probability that the electron has reached the surface is a maximum. This definition is by no means the only acceptable one. For example, one could equally well let  $l_{ps}$  correspond to some fixed value of  $H(\bar{x})$ , say  $1/e$ . The ambiguity does not appear to us a serious objection; the choice we have made is, at least, reasonable on intuitive grounds. Another objection might be that the m.f.p. is actually the path traversed by the electron moving along its trajectory until it strikes the surface. We have taken, however, the projection of this trajectory along the wire axis. In the limit  $l_i \gg r$ , to which we are restricting this discussion, these two lengths are the same.

We shall now assume that the distance  $l_{ps}$  calculated in this fashion applies to all electrons, also those not moving initially along the axis of the wire. In fact, one can show that in the limit  $l_i \gg r$

$$\frac{1}{l_2(\psi)} = \frac{1}{l_{2a}(\psi)} + \frac{1}{l_{2b}(0)} \quad (10)$$

where  $\psi$  is the angle between the initial direction of motion of the electron and the axis of the wire.

We maximize Equation (9) with respect to  $x$  and obtain

$$\bar{x}_0 = l_{ps} = [2 ar^2/\pi \theta_{\max}^4]^{1/3} = [Ar^2 \theta_D^2 / 2 \pi \varrho_i(T) T^2]^{1/3}. \quad (11)$$

With the aid of Equation (3) and (6) we have

$$\varrho_W = \varrho_i(T) + \varrho_0 + \varrho_s + \varrho_{ps}(r, T) \quad (12)$$

where

$$\varrho_{ps}(r, T) = (2 \pi A^2)^{1/3} (T/\theta_D)^{2/3} [\varrho_i(T)]^{1/3} (r)^{-2/3} \quad (13)$$

is a size and temperature dependent contribution to the resistivity.

### III. Comparison with Experiment

Our result, given by Equation (13), allows direct comparison with the results of OLSEN and ANDREW. We call attention here to the fact that Equation (13) contains no adjustable parameters whatever. The quantity  $A$  for indium<sup>8)</sup> and mercury<sup>9)</sup> is approximately equal to  $2 \times 10^{-11}$  ohm-cm<sup>2</sup> for both metals. The ideal bulk resistivities are obtained most conveniently by extrapolating the resistivities of the thickest wires, whose surface effects are negligible, to  $T = 0^\circ \text{K}$ , thereby obtaining the bulk residual resistivities. By a simple process of subtraction one now finds  $\rho_i(T)$ , the lowest curves of Figures 1 and 2. The wire radius,  $r$ , is also known.

The DEBYE characteristic temperature of indium has been determined quite accurately<sup>11)</sup>. Below  $3^\circ \text{K}$   $\theta_D$  is constant at  $109^\circ \text{K}$ ; between  $3^\circ \text{K}$  and about  $5^\circ \text{K}$  it falls, and at  $4.2^\circ \text{K}$  its value is  $106^\circ \text{K}$ . The Debye temperature of mercury is unfortunately not so well known. BLACKMAN<sup>12)</sup> gives  $\theta_D = 90^\circ \text{K}$ , GERRITSEN<sup>13)</sup> quotes  $\theta_D = 69^\circ \text{K}$ , KLEMENS<sup>14)</sup> seems to favor  $\theta_D = 60^\circ \text{K}$ , and HULM<sup>15)</sup>, who is particularly concerned with the low temperature region, offers  $\theta_D = 37^\circ \text{K}$ . We arbitrarily select yet another value which is intermediate of the extremes but leans more toward Hulm's result, namely  $\theta_D(\text{Hg}) = 50^\circ \text{K}$ . Should subsequent determinations prove this choice completely unrealistic the error is easily corrected.

If we now take the difference between the ordinate of a particular curve of Figure 1 and the ordinate of the curve marked In-6,2 (the ideal resistivity of the bulk) we have the experimental value of  $\rho_{ps}$ . Similarly for mercury, using here Figure 2 and the curve marked Hg-1 as the bulk ideal resistivity curve. The experimental values of  $\rho_{ps}$  are shown by solid curves in Figure 3 and 4, and the calculated curves are shown dashed. In Figures 4 the arrows indicate that temperature at which  $l_i = r$ ; since our derivation applies only in the limit  $l_i \gg r$ , comparison of Equation (13) with the results of ANDREW should be limited to the temperature region below  $2.5^\circ \text{K}$ .

The excellent qualitative agreement between the calculated and experimental results is immediately apparent. Moreover, in view of the absence of any adjustable parameters whatever, the order of magnitude agreement is also gratifying. It is significant that the calculated results consistently exceed the experimental by factors of about 3 in the case of indium and of about 2 in the case of mercury. We shall presently return to discuss and interpret this discrepancy which, we think, has an interesting significance and sheds light on the conduction properties of the bulk metal.

Figures 5 and 6 provide a comparison of the observed and predicted size dependence of  $\rho_{ps}$ . According to Equation (13)  $\rho_{ps}$  should be propor-

tional to  $r^{-2/3}$  at a fixed temperature. Consequently, if, for some given temperatures, we plot  $\rho_{ps}$  against  $r^{-2/3}$  we should obtain a family of straight lines emanating from the origin. In the case of indium, with a fair number of experimental points available, we see that these do indeed form a family of straight lines as predicted. In the case of the mercury wires we again find good agreement with the  $r^{-2/3}$  relation at 2,0° K. At 2,5 K the point corresponding to the wire of largest diameter falls below the straight line. This is the deviation from our theoretical result which is to be expected. As the wire diameter becomes comparable to the bulk m.f.p. the theoretical result, predicated on the assumption that  $l_i \gg r$ , must overestimate surface effects. The deviation of the experimental points from the straight line at 3.0° K comes as no surprise. We conclude that in the region of validity of the theory, the data that are available are in excellent agreement with the predicted size variation of  $\rho_{ps}$ .

Before comparing the predicted and observed temperature dependence we turn our attention to the systematic overestimate of the theory for

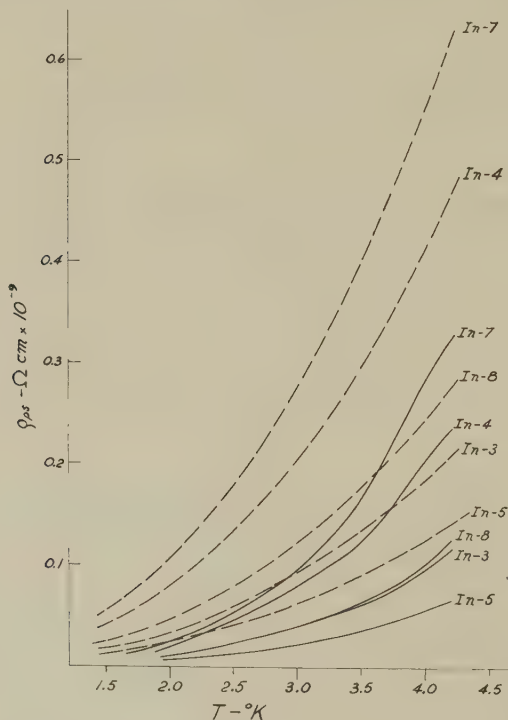


Fig. 3

The observed (solid lines) and calculated (dashed lines) resistivities of thin indium wires due to phonon-surface scattering.

$\varrho_{ps}$  to which we have already called attention. In retrospect we recognize that this is indeed what we might have anticipated once we realize that *not all phonon scattering leads to small angle events*. It is well known that Umklapp and Normal processes contribute to the ideal resistivity of a metal, with the former making perhaps the dominant contribution. Umklapp processes are generally large angle events, and the presence of the surfaces does not enhance the effectiveness of Umklapp scattering. Our theoretical results are too large because we have used the total ideal resistivity  $\varrho_i(T)$  in Equation (13), whereas we should only use that part attributable to Normal scattering. Thus, we should write  $\varrho_i^N(T)$  in Equation (13) rather than the total ideal resistivity.

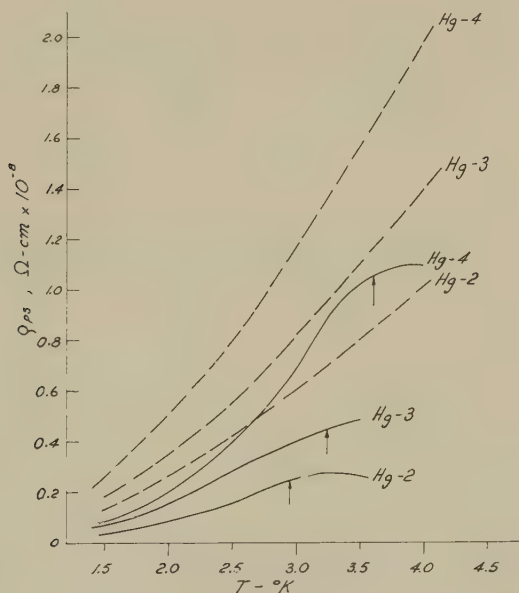


Fig. 4

The observed (solid lines) and calculated (dashed lines) resistivities of thin mercury wires due to phonon-surface scattering.

To bring calculated and observed values of  $\varrho_{ps}$  into numerical agreement we must set

$$\text{for indium: } \varrho_i^N(T) \simeq \varrho_i(T)/27; \quad \frac{\varrho_i^N(T)}{\varrho_i^U(T)} \simeq 0,04$$

$$\text{for mercury: } \varrho_i^N(T) \simeq \varrho_i(T)/8; \quad \frac{\varrho_i^N(T)}{\varrho_i^U(T)} \simeq 0,14.$$

These ratios for the resistivities due to Normal and Umklapp events are most reasonable<sup>16</sup>). Indeed, we believe that one of the most interesting and important results of an investigation such as Olsen's may be that it allows an estimate of the Umklapp resistivity.

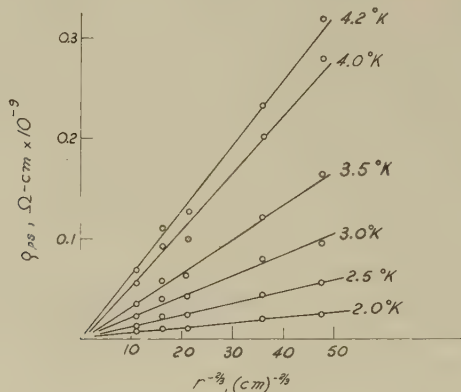


Fig. 5

The observed (0) and predicted (straight lines) size dependence of the resistivity of thin indium wires due to phonon-surface scattering.

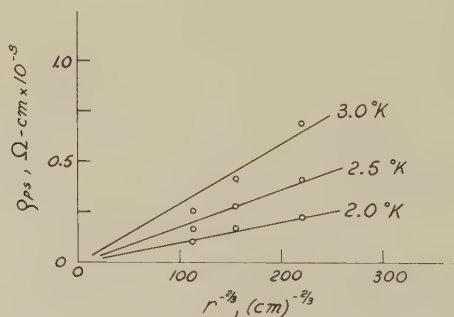


Fig. 6

The observed (0) and predicted (straight lines) size dependence of the resistivity of thin mercury wires due to phonon-surface scattering.

If the argument of the preceding paragraph is accepted, a comparison of the predicted and observed temperature dependence is now slightly complicated. We cannot make use of the observed temperature dependence of the ideal resistivity of the bulk samples; instead, we need to know the temperature dependence of  $\rho_i^N(T)$ , that portion of the ideal resistivity



arising from Normal scattering only. According to Bloch theory<sup>17</sup>)  $\varrho_i^N(T)$  is proportional to  $T^5$ . That theory is, however, based on the free electron model – on all the assumptions and approximations implicit therein – certainly an extreme and untenable oversimplification of the true state of affairs. At the same time, we recognize that we have employed this very same model here ourselves, and the use of the results of the Bloch theory is, at least, consistent. Moreover, a  $T^5$  law appears to be approximately valid in many cases and is, probably, not far off the mark.

If we then accept the  $T^5$  law it follows from Equation (13) – now modified by the replacement of  $\varrho_i(T)$  by  $\varrho_i^N(T)$  – that  $\varrho_{ps}$  should be proportional to  $T^{2.33}$ . The slopes of the straight lines of Figures 5 and 6 are proportional to the temperature dependent factors appearing in Equation (13). Consequently, a plot of these slopes as functions of the temperature should reveal the average experimental temperature dependence. Such logarithmic plots are shown in Figures 7 and 8 together with straight lines

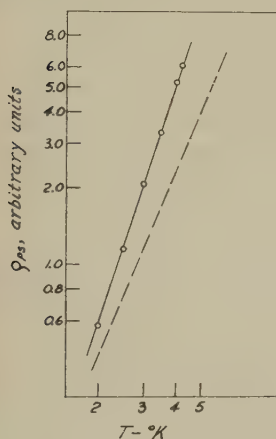


Fig. 7

The average temperature dependence of the resistivity of thin indium wires due to phonon-surface scattering. The predicted slope is shown by the dashed line.

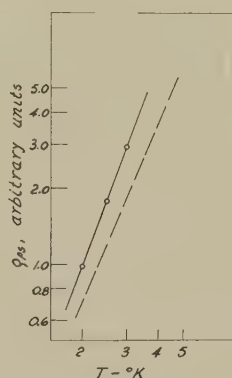


Fig. 8

The average temperature dependence of the resistivity of thin mercury wires due to phonon-surface scattering. The predicted slope is shown by the dashed line.

(dashed) corresponding to the theoretical slope of 2.33. For the indium samples  $\log \varrho_{ps}$  versus  $\log T$  yields a straight line with a slope of nearly three; for the mercury wires a slope of about 2.6 is indicated. (If the points of Figures 6 are plotted individually one obtains straight lines whose slopes are 2.3, 2.5, and 2.9.) The expression for  $\varrho_{ps}$  which we derived

does not quite agree with the observed temperature dependence. However, the discrepancy is sufficiently small to suggest that we are on the right track. It is very likely that one or another assumption which we were forced to make causes the result to display a somewhat weaker temperature dependence than it should.

#### IV. Conclusion

The results presented in the previous sections suggest that the explanation for the failure of Matthiessen's rule in thin wires originally proposed by OLSEN is indeed quite plausible.

We have obtained an analytic expression for the phonon-surface resistivity which may be brought into excellent numerical agreement with existing data on indium and mercury wires provided a reasonable ratio of Normal-to-Umklapp scattering is postulated. The predicted size dependence of the phonon-surface resistivity is in excellent agreement with observation. The predicted temperature dependence is as  $T^{2.33}$ , and the experimental results show dependences ranging from  $T^{2.3}$  to  $T^{3.0}$ , the more rapid temperature variation being favored.

The assumptions which we have made have been numerous and rather difficult – not to say impossible – to justify. We believe that the best justification for our procedure rests in its ability to yield a simple analytic expression which allows comparison with experiment. The method obviates long and tedious numerical computations which often obscure insight into the physical significance of the important mechanisms and whose results are generally not so readily compared to experimental data. As this manuscript was being prepared we received a preprint of a paper (published as companion to the present paper) by LÜTHI and WYDER<sup>18</sup>, who attacked the same problem from a rather different avenue. They calculated the m.f.p. of free electrons in a thin wire by means of a Monte-Carlo calculation. This approach has the advantage that it avoids one of the assumptions which we were forced to make, namely that involving the statistical independence of the several relaxation mechanisms. Moreover, their numerical approach is not limited to  $l_i \gg r$ , as is our calculation.

LÜTHI and WYDER seem to reproduce the experimental results reasonably well. Unfortunately, the numerical approach does not allow for the same detailed comparison with the data of OLSEN and ANDREW as we could give (see Figures 5, 6, 7, and 8). The qualitative agreement of their results and ours suggests that the strengthening of one of the weakest links of our argument does not appear to change the final result very much. It is surprising, however, that LÜTHI and WYDER obtain good

numerical agreement under the assumption that Umklapp processes may be neglected altogether. This is in sharp contrast to our view that Umklapp processes are approximately as important in indium and mercury as they are in most other metals.

Quite apart from the approximations and assumptions we have indulged and which have been stated explicitly, a number of others are implicit in this as well as in the work of FUCHS, DINGLE, and of LÜTHI and WYDER.

First, we have not considered the possible effects of localized surface (TAMM) states. Very little is known of surface states in metals although in recent years investigations in this field have been initiated<sup>19</sup>.

Secondly, we have assumed throughout, as did all other workers, that a continuum of states in momentum space is available to electrons and phonons. It is clear, however, that in a thin wire the number of vibrational modes with wave vector normal to the wire axis is  $3N_A$ , where  $N_A$  is the number of atoms in a cross sectional area of the wire. For very thin wires this number may be sufficiently small so that at low temperatures the energy difference between neighboring vibrational modes with wave vector normal to the wire axis is of order  $kT$ . In that event the usual description (density of states, etc.) for electron-phonon scattering must fail<sup>20</sup>). Size effects attributable to the discreteness of the phonon spectrum have been observed in other experiments<sup>21</sup>). Of course, the same considerations also apply to the spectrum of electron energies. Consequently, a treatment which assumes continuous electron and phonon spectra *a priori* cannot be correct in the limit of thin wires and low temperatures.

In conclusion we believe that the success which we have attained, as well as that reported by LÜTHI and WYDER, establishes Olsen's mechanism as one of the dominant ones in thin samples. In contrast to LÜTHI and WYDER, who neglect Umklapp entirely, we believe that careful experiments on thin wires provide a means of separating the Normal and Umklapp contributions to the total resistivity in a metal.

## V. Acknowledgements

A portion of the material presented here formed part of the dissertation submitted by one of us (H. G. S.) to Michigan State University in partial fulfillment of the requirements for the M. S. degree in Physics. The work was continued and the paper prepared while the other (F. J. B.) held an N. S. F. post-doctoral fellowship at the Clarendon Laboratory, Oxford. The hospitality of Prof. W. E. LAMB, Jr. and of Prof. B. BLEANEY is gratefully acknowledged. A preliminary report of the work was presented in August, 1959, at the Solid State Conference in Melbourne, Australia.

## References

- <sup>1)</sup> J. J. THOMSON, Proc. Cambridge Phil. Soc. *11*, 120 (1901).
- <sup>2)</sup> L. NORDHEIM, Act. Sci. et Ind., No. 131, 1934 (Hermann, Paris).
- <sup>3)</sup> K. FUCHS, Proc. Cambridge Phil. Soc. *34*, 100 (1938).
- <sup>4)</sup> R. B. DINGLE, Proc. Roy. Soc. *A 201*, 545 (1950).
- <sup>5)</sup> E. H. SONDHEIMER, Adv. in Physics *1*, 1 (1952).
- <sup>6)</sup> D. K. C. MACDONALD, *Electrical Conductivity of Metals and Alloys at Low Temperatures*, Hb. der Phys., Vol. *14*, 137 (Springer, Berlin 1956).
- <sup>7)</sup> A. N. FRIEDMAN and S. H. KOENIG, I. B. M. Journal, April 1960.
- <sup>8)</sup> J. L. OLSEN, Helv. Phys. Acta *31*, 713 (1958).
- <sup>9)</sup> E. R. ANDREW, Proc. Phys. Soc. *A 62*, 77 (1949).
- <sup>10)</sup> B. ROSSI and K. GREISEN, Rev. Modern Phys. *13*, 240 (1941).
- <sup>11)</sup> J. R. CLEMENT and E. H. QUINNELL, Phys. Rev. *92*, 258 (1953).
- <sup>12)</sup> M. BLACKMAN, *Specific Heat of Solids*, Handb. Phys., Vol. VII-1, 325 (Springer, Berlin 1955).
- <sup>13)</sup> A. N. GERRITSEN, *Metallic Conductivity, Experimental Part*, Handb. Phys., Vol. *19*, 137 (Springer, Berlin 1956).
- <sup>14)</sup> P. G. KLEMENS, *Thermal Conductivity of Solids at Low Temperatures*, Handb. Phys., Vol. *14*, 198 (Springer, Berlin 1956).
- <sup>15)</sup> J. K. HULM, Proc. Roy. Soc. *A 204*, 98 (1950).
- <sup>16)</sup> M. BAILYN and H. BROOKS, Bull. Amer. Phys. Soc. *1*, 300 (1956). — H. PFENNIG, Z. Phys. *155*, 332 (1959). — J. M. ZIMAN, *Electrons and Phonons* (Oxford University Press, 1960).
- <sup>17)</sup> A. H. WILSON, *The Theory of Metals* (Cambridge Univ. Press, 1953).
- <sup>18)</sup> B. LÜTHI and P. WYDER, accompanying paper. We are grateful to Drs. LÜTHI and WYDER for sending us a copy in advance of publication.
- <sup>19)</sup> G. BONFIGLIOLI, E. COEN, R. MALVANO, Phys. Rev. *101*, 1281 (1956).
- <sup>20)</sup> W. KLOSE, Z. Naturf. *13a*, 978 (1958).
- <sup>21)</sup> D. A. JENNINGS and W. H. TANTTILA, J. Chem. Phys. *28*, 976 (1958).

# Résonance paramagnétique de l'ion $\text{Cr}^{+3}$ dans un monocristal de $\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$

par G. Emch et R. Lacroix

**Résumé.** Le complexe  $\text{Cr}(\text{H}_2\text{O})_6^{+++}$  dilué dans un monocristal de chlorure d'aluminium hexahydraté a été étudié par la résonance paramagnétique dans la bande des 3 cm. Le système pouvant être décrit par un hamiltonien de spin, on en a déterminé expérimentalement les paramètres, soit

$$g_{\parallel} = 1,9769 \pm 0,0004 \quad g_{\parallel} - g_{\perp} = +(5 \pm 2) \cdot 10^{-4}$$

$2D = +(6,52 \pm 0,01) \cdot 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$ . Le taux de covalence a été estimé à 0,39 en utilisant le modèle de OWEN<sup>5</sup>).

On a expliqué théoriquement la faible valeur observée pour D d'après les données cristallines et les résultats de l'absorption optique; on a évalué dans ce but le champ électrostatique local dû aux ions  $\text{Cl}^-$  et aux dipôles  $\text{H}_2\text{O}$ , en séparant l'effet des dipôles induits et celui de la désorientation des dipôles propres due aux liaisons hydrogène.

## I. Introduction

Les méthodes de la résonance paramagnétique ont été appliquées à l'étude de l'ion  $\text{Cr}^{+++}$  substitué à  $\text{Al}^{+++}$  dans un monocristal de  $\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ , l'ion  $\text{Cr}^{+++}$  trouvant dans le chlorure d'Aluminium hexahydraté un site particulièrement adéquat en raison de la grande similitude de ce sel avec le chlorure de chrome isomorphe. Ces deux sels cristallisent en effet selon les caractéristiques suivantes<sup>1</sup>):

Groupe spatial  $D_{3d}^6$

Symétrie locale autour du cation  $\text{C}_{3i}$ .

Dimensions de la cellule rhomboédrique:

$$\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}: \quad a = 7,85 \text{ \AA} \quad \alpha = 97^\circ$$

$$\text{CrCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}: \quad a = 7,95 \text{ \AA} \quad \alpha = 97^\circ$$

La figure 1 montre la cellule rhomboédrique, projetée sur un plan perpendiculaire à l'axe  $\text{C}_3$  et passant par l'ion Cr (seules les molécules  $\text{H}_2\text{O}$  immédiatement voisines de cet ion ont été représentées).



## II. Les niveaux d'énergie

Le voisinage de l'ion  $\text{Cr}^{+3}$  comprend deux enveloppes successives; l'une est constituée par 6 molécules  $\text{H}_2\text{O}$  placées aux sommets d'un octaèdre quasi régulier, l'autre par 12 ions  $\text{Cl}^-$ , environ deux fois plus éloignés de l'ion central que les molécules  $\text{H}_2\text{O}$  (voir fig. 1).

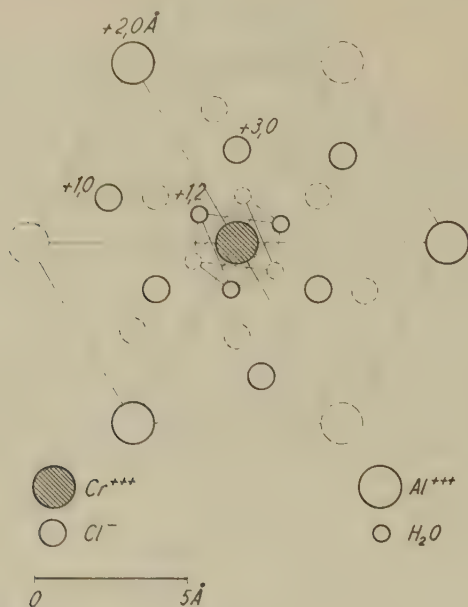


Fig. 1

Le champ électrostatique résultant pourra donc être décrit comme un champ de symétrie essentiellement cubique, perturbé par une faible composante trigonale selon l'axe  $C_3$ .

Le niveau fondamental de l'ion libre  $\text{Cr}^{+3}$  étant un état  $(3d)^3 F$ , trois sous-niveaux apparaissent en champ cubique et correspondent, par ordre d'énergie croissante, aux représentations  $\Gamma_2$ ,  $\Gamma_5$  et  $\Gamma_4$  du groupe cubique; sous l'effet de la faible perturbation trigonale, les deux triplets  $\Gamma_5$  et  $\Gamma_4$  se décomposent tous deux en un doublet et un singulet.

On peut alors rendre compte de l'effet du champ magnétique auquel on soumet le cristal, ainsi que du couplage spin-orbite, au moyen d'un hamiltonien de  $\text{spin}^2$ ) de la forme:

$$\mathfrak{H} = \beta [g_{\parallel} S_z B_z + g_{\perp} (S_x B_x + S_y B_y)] + D S_z^2$$

où les constantes  $g_{\parallel}$ ,  $g_{\perp}$  et  $D$  sont liées par les relations

$$g_{\parallel} = g_e (1 - \lambda A_{\parallel}), \quad g_{\perp} = g_e (1 - \lambda A_{\perp}), \quad D = -\lambda^2 (A_{\parallel} - A_{\perp})$$

$$\text{avec} \quad A_{\parallel} = \frac{\langle 2 | L_z | 5_1 \rangle \langle 5_1 | L_z | 2 \rangle}{E'}$$

$$A_{\perp} = \frac{\langle 2 | L_x | 5_2 \rangle \langle 5_2 | L_x | 2 \rangle + \langle 2 | L_x | 5_3 \rangle \langle 5_3 | L_x | 2 \rangle}{E''}$$

où  $|2\rangle$  est l'état fondamental  $\Gamma_2$

$|5_i\rangle$  sont les 3 états appartenant à  $\Gamma_5$ .

$E'$  et  $E''$  sont respectivement les énergies du singulet ( $|5_1\rangle$ ) et du doublet ( $|5_2\rangle$  et  $|5_3\rangle$ ) issus de  $\Gamma_5$  en champ trigonal, comptées à partir du niveau fondamental.

En utilisant les fonctions d'onde d'ordre zéro qui se rapportent aux états considérés<sup>3</sup>), on calcule aisément que  $A_{\parallel} = 4/E'$  et  $A_{\perp} = 4/E''$ ,

$$\text{d'où } g_{\parallel} = g_e (1 - 4\lambda/E'); \quad g_{\perp} = g_e (1 - 4\lambda/E''); \quad D = -4\lambda^2 (E'' - E'/E' E'')$$

On calcule alors les niveaux d'énergie et la position des raies d'absorption en fonction du champ magnétique par la méthode habituelle.

### III. Résultats expérimentaux

Les mesures ont été effectuées à la fréquence de 9210 MHz, au moyen du spectrographe décrit par RYTER<sup>4</sup>), le DPPH ayant été pris comme étalon avec  $g_0 = 2,0037$ .

Ainsi que la théorie le prévoit, on a observé 3 raies principales ( $|Am| = 1$ ) accompagnées chacune de 4 pics équidistants, beaucoup moins intenses, dus à la structure hyperfine (liée à la présence de  $^{53}\text{Cr}$  dont le spin nucléaire vaut 3/2), ces pics étant plus ou moins noyés dans la largeur de la raie principale qu'ils encadrent.

La mesure de la position des 3 raies du spectre pour  $\theta = 0$ , ainsi que de celle de la raie centrale pour  $\theta = \pi/2$ , permet de calculer avec le plus de sûreté, les paramètres qui interviennent dans l'hamiltonien.

On obtient ainsi:

$$g_{\parallel} = 1,9769 \pm 0,0004$$

$$2D = (6,52 \pm 0,01) 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$$

$$g_{\parallel} - g_{\perp} = + (5 \pm 2) 10^{-4}$$

en utilisant la formule

$$g_{\parallel} - g_{\perp} = g_{\parallel} [1 - B_{\parallel}/B_{\perp} (1 + (3/4) d^2 + (75/64) d^4 + \dots)]$$

où on pose  $d = D/\hbar\nu$

et où on appelle  $B_{\parallel}$  et  $B_{\perp}$  la position de la raie centrale du spectre avec le champ magnétique respectivement parallèle et perpendiculaire à l'axe cristallin.

La position des raies du spectre des isotopes pairs en fonction de l'angle  $\theta$  compris entre la direction du champ magnétique et l'axe trigonal est représentée sur la figure 2. Les points expérimentaux y sont comparés avec les courbes calculées à partir des paramètres de l'hamiltonien donnés ci-dessus.

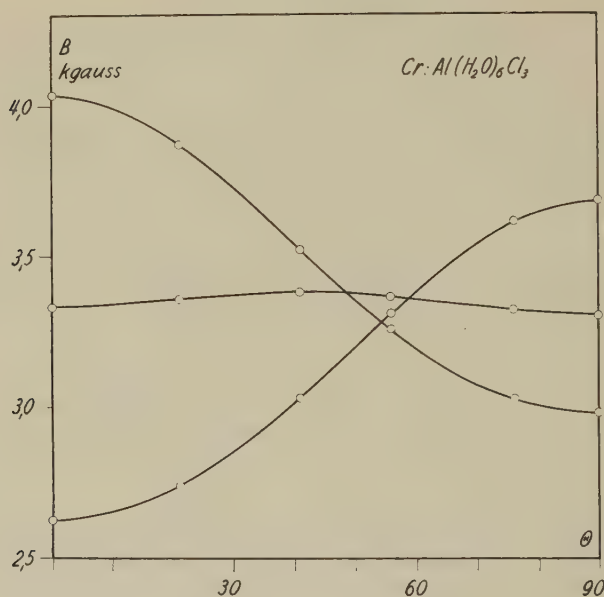


Fig. 2

#### IV. Covalence. Remarque sur l'anisotropie. Signe de D

Si, suivant OWEN<sup>5</sup>), on tient compte de ce que les liaisons entre l'ion  $\text{Cr}^{3+}$  et l'octaèdre des 6 molécules  $\text{H}_2\text{O}$  immédiatement voisines sont partiellement covalentes (liaison  $\sigma$ ), les relations donnant  $g_{\parallel}$  et  $g_{\perp}$  et  $D$  restent valables si on remplace le tenseur  $A$  par  $a^2 A$ , où  $(1 - a^2)$  mesure le taux de covalence. On a alors :

$$g_{\parallel} = g_e (1 - 4 a^2 \lambda / E')$$

$$g_{\perp} = g_e (1 - 4 a^2 \lambda / E'')$$

$$D = -4 a^2 \lambda^2 (E'' - E') / E' E''.$$

On peut alors calculer  $a^2$  d'après la valeur de  $g$ :

$$a^2 = (g_e - g) E / 8 \lambda$$

Or, des mesures spectroscopiques permettent de mesurer  $\lambda$ , constante de couplage spin-orbite pour l'ion libre et  $E$ , séparation entre  $\Gamma_2$  et  $\Gamma_5$  (connue par absorption optique), qui peut être confondue avec  $E'$  et  $E''$  pour ce calcul. On a ici:

$$\lambda = 91 \text{ cm}^{-1} \quad (6)$$

$$E = 17500 \text{ cm}^{-1} \quad (7) \quad \text{d'où}$$

$$a^2 = 0,61.$$

On remarquera encore que la relation  $(g_{\parallel} - g_{\perp}) \lambda = 2 D$  ne dépend pas de  $a^2$ . L'anisotropie  $g_{\parallel} - g_{\perp}$  donnée par cette formule est  $7 \cdot 10^{-4}$ , en accord avec l'expérience. On peut donc affirmer que  $D > 0$ , pour autant que la validité de l'hamiltonien de spin soit vérifiée, ce qui est très probable vu le faible champ cristallin.

## V. Evaluation de l'effet du champ cristallin sur la séparation du niveau ${}^4\Gamma_5$

En calculant explicitement l'effet du champ cristallin trigonal sur le niveau  $\Gamma_5$ , on peut estimer théoriquement l'ordre de grandeur de  $D$ , au moyen de la formule:

$$D = -4 \lambda^2 (E'' - E') / E' E'' \cong - (E'' - E') (2 \lambda / E)^2$$

Les  $n$  charges disposées autour de l'ion  $\text{Cr}^{+++}$  soumettront les électrons optiques de celui-ci à un potentiel:

$$V_c(r, \theta, \varphi) = \sum_{k=0}^{\infty} \sum_{q=-k}^k A_k^q r^k Y_k^q(\theta, \varphi) = \sum_k \sum_q V_k^q$$

où les  $A_k^q$  dépendent de la répartition des charges par la relation

$$A_k^q = \sum_{i=1}^n e_i Y_k^q(\theta_i, \varphi_i) / (2k+1) r_i^{k+1} \varepsilon_0$$

Comme  $V_c \gg \lambda \vec{L} \cdot \vec{S}$ , les états de base  $\Gamma_5$  seront des combinaisons linéaires des états  $|L M_L\rangle$ .

On calcule les éléments de matrice du champ cristallin en s'aidant du théorème de Wigner-Eckart :

$$\langle L M_L | V_k^q | L' M'_L \rangle = \frac{(-1)^{L+M_L-k+q}}{(2k+1)^{1/2}} \langle L || V_k || L' \rangle \langle L L' - M_L M'_L | L L' k - q \rangle$$

où  $\langle L L' M_L M'_L | L L' k - q \rangle$  sont les coefficients de Clebsch-Gordan.

Il suffit alors de calculer la valeur d'un seul de ces éléments de matrice en partant des fonctions à un électron :

$$\langle n l m | V_k^q | n' l' m' \rangle = A_k^q \int_0^\infty dr f_{nl}(r) f_{n'l'}(r) r^k \oint d\Omega \bar{Y}_l^m(\theta, \varphi) Y_k^q(\theta, \varphi) Y_{l'}^m(\theta, \varphi)$$

On peut encore écrire

$$\oint d\Omega \bar{Y}_l^m Y_k^q Y_{l'}^m = c_k(l m l' m') \cdot (2k + 1/4 \pi)^{1/2}$$

les coefficients  $c_k$  étant tabulés<sup>8)</sup>.

On remarque encore que les coefficients de Clebsch-Gordan ne pouvant être différents de zéro que si  $k \leq l + l'$ , il n'est pas nécessaire de développer  $V_c$  plus loin que les termes en  $k = l + l' = 4$  pour des électrons  $d$ .

Six charges identiques, disposées aux sommets d'un octaèdre déformé selon l'axe  $C_3$  après avoir tourné d'un angle quelconque autour de celui-ci, engendrent un potentiel dont la partie trigonale (qui seule nous intéresse ici) peut s'écrire :

$$V_t = A_2^0 r^2 Y_2^0 + A_4^0 r^4 Y_4^0 + A_4^3 r^4 (Y_4^{-3} + Y_4^3)$$

avec

$$A_2^0 = (e_0/4 \pi \epsilon_0) (6 \sqrt{\pi}/\sqrt{5}) (3 \cos^2 \theta_0 - 1)/r_0^3$$

$$A_4^0 = (e_0/4 \pi \epsilon_0) (\sqrt{\pi}/2) (35 \cos^4 \theta_0 - 30 \cos^2 \theta_0 + 3 + 7 \sqrt{2} \sin^3 \theta_0 \cos \theta_0 \cos 3 \varphi_0)/r_0^5$$

$$A_4^3 = -i (e_0/4 \pi \epsilon_0) (35 \pi)^{1/2} (\sin^3 \theta_0 \cos \theta_0 \sin 3 \varphi_0)/r_0^5$$

où  $(r_0, \theta_0; \varphi_0)$  sont les coordonnées d'une quelconque des 3 charges situées au-dessus de l'ion  $\text{Cr}^{+++}$ .  $\theta_0$  et  $\varphi_0$  sont comptés à partir des axes  $x, y, z$  (fig. 3) sur lesquels on construit les fonctions d'onde cubique qui servent de base aux éléments de matrice de  $V_t$ .



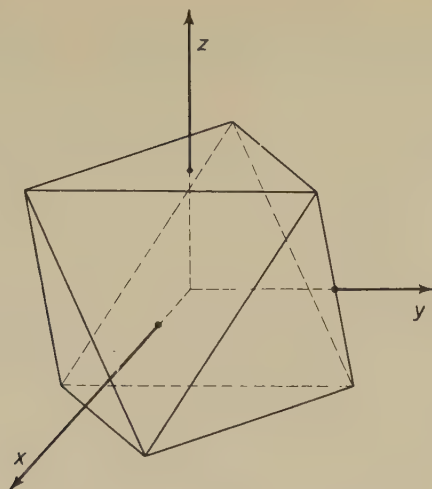


Fig. 3

Les fonctions propres des états  $I_5^7$  étant<sup>3)</sup>

$$|5_1\rangle = (1/2)^{1/2} (Y_3^3 + Y_3^{-3})$$

$$|5_2\rangle = (1/6)^{1/2} Y_3^2 - (5/6)^{1/2} Y_3^{-1}$$

$$|5_3\rangle = (1/6)^{1/2} Y_3^{-2} + (5/6)^{1/2} Y_3^1$$

on obtient, en calculant les éléments de matrice par la méthode indiquée:

$$(E'' - E') = (3\sqrt{5/28}\sqrt{\pi}) eA_2^0 \langle r^2 \rangle + (5/21\sqrt{\pi}) eA_4^0 \langle r^4 \rangle$$

où  $\langle r^2 \rangle$  et  $\langle r^4 \rangle$  valent respectivement 1,40 et 4,03 unités atomiques (voir appendice).

En calculant alors l'effet des 12 ions  $\text{Cl}^-$ , on trouve:

$$E'' - E' = + 110 \text{ cm}^{-1}$$

D'autre part, ANDRESS et CARPENTER<sup>1)</sup> font remarquer que chacune des molécules d'eau entourant l'ion paramagnétique se trouve à égale distance des deux ions  $\text{Cl}^-$  les plus proches et que l'angle  $\text{Cl}^- - \text{H}_2\text{O} - \text{Cl}^-$  vaut  $107^\circ$ , ce qui suggère fortement une orientation de la molécule  $\text{H}_2\text{O}$  en direction de ces deux charges  $\text{Cl}^-$  (liaisons hydrogène). Pour tenir compte de la direction particulière des dipôles propres des molécules d'eau, on a calculé l'effet dû à 12 charges disposées aux sommets de deux octaèdres emboîtés très voisins.

En notant  $\Delta_p$  la contribution à  $E'' - E'$  due aux dipôles des molécules d'eau et en projetant le dipôle  $\mathbf{p}$  sur le système local d'axes orthogonaux ( $[\mathbf{r}]$ ,  $[\boldsymbol{\theta}]$ ,  $[\boldsymbol{\varphi}]$ ) de la figure 4, on a

$$\Delta_p = \frac{1}{\epsilon_0} \left( \frac{\partial \Delta}{\partial r} p_r + \frac{1}{r} \frac{\partial \Delta}{\partial \theta} p_\theta + \frac{1}{r \sin \theta} \frac{\partial \Delta}{\partial \varphi} p_\varphi \right)_{\substack{r=r_0 \\ \theta=\theta_0 \\ \varphi=\varphi_0}} 0$$

où  $\Delta$  peut être mis sous la forme :

$$\Delta = \epsilon_0 A (3 \cos^2 \theta - 1) / r^3 + \epsilon_0 B (35 \cos^4 \theta - 30 \cos^2 \theta + 3 + 7 \sqrt{2} \sin^3 \theta \cos \theta \cos 3\varphi) / r^5$$

avec

$$A = (9/14) (e/4 \pi \epsilon_0) \langle r^2 \rangle$$

$$B = (5/42) (e/4 \pi \epsilon_0) \langle r^4 \rangle$$

On remarque en développant que  $\left( \frac{\partial \Delta}{\partial \varphi} \right)_{\varphi=0} = 0$ , d'où

$$\begin{aligned} \Delta_p = & -p_r [3 A (3 \cos^2 \theta_0 - 1) / r_0^4 + 5 B (35 \cos^4 \theta_0 - 30 \cos^2 \theta_0 + 3 + 7 \sqrt{2} \sin^3 \theta_0 \cos \theta_0) / r_0^6] \\ & - p_\theta [6 A \cos \theta_0 \sin \theta_0 / r_0^4 + B \{140 \cos^3 \theta_0 \sin \theta_0 - 60 \cos \theta_0 \sin \theta_0 - 7 \sqrt{2} \sin^2 \theta_0 (3 \cos^2 \theta_0 - \sin^2 \theta_0)\} / r_0^6] \end{aligned}$$

En raison de la cause même de l'orientation des dipôles propres, chacun d'eux doit pointer vers le milieu de la distance qui sépare les deux  $\text{Cl}^-$  les plus voisins; si on désigne ce point par  $(R, \Theta, \Phi)$ , on aura :

$$\begin{aligned} \Delta_p = & p [2 \sqrt{2} (3 + q) A / r_0^4 - 6 \sqrt{2} (5 + q) B / r_0^6] \delta \theta \\ & - p 2 \sqrt{2} q (A / r_0^4 - 3 B / r_0^6) \delta \Theta + p (2/3) q (A / r_0^4 - 3 B / r_0^6) \Phi^2 \end{aligned}$$

$$\text{avec} \quad \delta \Theta = \Theta - \theta_{00} \quad \delta \theta = \theta_0 - \theta_{00} \quad q = R / R - r_0$$

où  $\theta_{00}$  est l'angle pour lequel l'octaèdre  $\text{H}_2\text{O}$  est régulier (ces angles sont exprimés en radians).

En introduisant alors dans l'équation les valeurs  $\delta \Theta \cong 3^\circ$  et  $\Phi \cong 12^\circ$  tirées du travail de ANDRESS et CARPENTER, on obtient pour la séparation  $\Delta_{p0}$  due aux dipôles propres, l'expression :

$$\Delta_{p0} = -200 \text{ cm}^{-1} + 180 \cdot \delta \theta \text{ cm}^{-1},$$

où  $\delta \theta$  est mesuré en degrés.

Le champ électrique local étant considérable, on doit s'attendre à avoir un moment dipolaire induit important; celui-ci sera dirigé selon  $[\mathbf{r}]$  en raison de la proximité de l'ion  $\text{Cr}^{+++}$  dont la charge est élevée; on aura alors pour cette contribution  $\Phi = \varphi_0 = 0$  et  $\delta\Theta = \delta\theta$ . Pour connaître l'ordre de grandeur du moment dipolaire induit, on utilisera la séparation  $\Gamma_2 - \Gamma_5$  (en champ cubique) donnée par

$$E = p \left( \frac{e}{4\pi\epsilon_0} \right) (25/3) \langle r^4 \rangle / r_0^6$$

La valeur qu'on déduira de cette équation pour le dipôle induit sera une valeur apparente, car on ne tient pas compte de la contribution de la covalence à la séparation des niveaux  $\Gamma_2 - \Gamma_5$ .

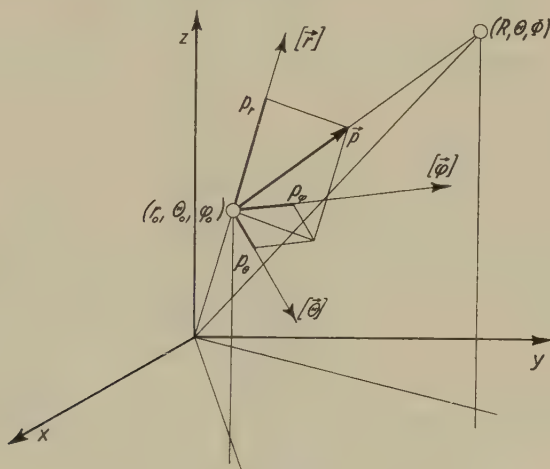


Fig. 4

Les mesures d'absorption optique<sup>7)</sup> donnent  $E = 17,500 \text{ cm}^{-1}$ . On peut alors calculer la contribution du dipôle induit et on trouve:

$$\Delta_{p \text{ ind.}} = + 675 \cdot \delta\theta \text{ cm}^{-1}$$

La séparation totale est alors donnée par

$$\Delta \cong - 100 \text{ cm}^{-1} + 850 \cdot \delta\theta \text{ cm}^{-1}$$

avec  $\delta\theta$  exprimé en degrés.

On peut alors comparer ce résultat avec la valeur qu'on déduit de la valeur expérimentale de  $D$ , soit

$$\Delta = - D (E/2\lambda)^2 = - 300 \text{ cm}^{-1}$$

## VI. Conclusions

En comparant les deux valeurs obtenues pour la séparation du niveau  $^4I'_5$  on voit que l'ordre de grandeur est le même et qu'on peut faire coïncider les deux valeurs en supposant une très légère déformation de l'octaèdre  $H_2O$  telle que  $\delta\theta = -15'$ .

On remarque alors que les trois effets envisagés – effet direct des ions  $Cl^-$ , orientation des dipôles et déformation de l'octaèdre  $H_2O$  – sont du même ordre de grandeur et peuvent agir en sens opposé, ce qui explique la faiblesse relative du champ trigonal (observé par son effet indirect sur le niveau fondamental  $I'_2$ ).

Le modèle employé pour cette évaluation ne tient pas compte de la covalence, ce qui peut modifier quelque peu les résultats obtenus, sans en changer notablement le caractère, ni l'ordre de grandeur.

Enfin, la méthode par laquelle on a déterminé le signe de  $D$  d'après les mesures de résonance est liée à la cohérence interne de l'hamiltonien de spin que des expériences effectuées en champ axial plus intense ont permis de mettre en doute.

Il semble toutefois, qu'en raison de la faible valeur de  $D$  observée, le cas étudié ici peut se situer dans le domaine où l'hamiltonien de spin est encore valable dans toutes ces conséquences.

En terminant, les auteurs tiennent à remercier le Fonds National Suisse pour la Recherche Scientifique, dont l'appui matériel a permis de réaliser cette recherche.

Institut de Physique, Université de Genève

## Appendice

Le calcul de  $D$  d'après les paramètres cristallins fait intervenir

$$\langle r^2 \rangle = \int r^2 dr f^2(r) r^2 \quad \text{et} \quad \langle r^4 \rangle = \int r^2 dr f^2(r) r^4$$

où  $f(r)$  est la partie radiale de la fonction d'onde pour les électrons  $3d$  du  $Cr^{+3}$ ; or, à notre connaissance, ces fonctions n'ont pas encore fait l'objet d'une publication, bien que  $f(r)$ , calculée par la méthode du champ auto-cohérent avec échange, soit connue pour plusieurs ions de structure électronique  $(3d)^3 4F$ ; en effet, HARTREE<sup>9)10)</sup> donne  $f(r)$  pour  $Ti^+ V^{+2}$  et  $Mn^{+4}$ , qui encadrent donc  $Cr^{+3}$  et pour lesquels, on peut estimer par intégration graphique  $\langle r^2 \rangle$  et  $\langle r^4 \rangle$  (Tab. 1).

	$Z$	$r^2$	$r^4$	$\sigma_2$	$\sigma_1$
$Ti^+$	22	3,56	31,85	16,05	16,7
$V^{+2}$	23	2,02	8,98	15,1	15,7
$Cr^{+3}$	24	1,40	4,03	14,5	15,1
$Mn^{+4}$	25	1,094	2,38	14,3	14,8

On voit immédiatement que la dépendance en  $Z$  est beaucoup trop rapide pour qu'on puisse songer à interpoler valablement entre ces valeurs. En prenant l'approximation du modèle hydrogénoïde, on peut calculer  $\langle r^k \rangle$  à partir de  $nl$  et  $Z^*$  où  $Z^* = Z - \sigma$ ,  $\sigma$  étant la « constante » d'écran. Inversement, connaissant  $\langle r^k \rangle$  on peut en tirer le  $\sigma$  correspondant. On remarque alors que pour un ion donné, la valeur qu'on doit attribuer à  $\sigma$  dépend de  $k$ ; de plus  $\sigma_k$  varie continûment le long d'une série iso-électronique, ainsi que JØRGENSEN l'a relevé<sup>11)</sup> à partir d'évaluations de la constante d'interaction spin-orbite. Partant des fonctions de HARTREE, on a calculé  $\langle r^k \rangle$  puis  $\sigma_k$  pour  $\text{Ti}^+ V^{+2}$  et  $\text{Mn}^{+4}$ . Remarquant que  $\sigma_k$  varie peu en fonction de  $Z$ , on a été fondé à interpoler les valeurs précédemment obtenues pour en tirer celles qui correspondent au  $\text{Cr}^{+3}$ . En réutilisant alors les formules du cas hydrogénoïde, on pouvait alors avoir  $\langle r^2 \rangle$  et  $\langle r^4 \rangle$  avec une sécurité suffisante.

Ces résultats, ainsi que les différentes valeurs qui interviennent dans ce calcul sont rapportés dans le tableau précédent (où  $\langle r^2 \rangle$  et  $\langle r^4 \rangle$  sont exprimés en unités atomiques).

### Bibliographie

- 1) K. R. ANDRESS et C. CARPENTER, *Z. Krist.* 87, 446 (1934).
- 2) A. ABRAGAM et M. H. L. PRYCE, *Proc. Roy. Soc. A* 205, 135 (1951).
- 3) B. BLEANEY et K. W. H. STEVENS, *Rep. Prog. Phys.* 16, 108 (1953).
- 4) Ch. RYTER, *HPA* 30, 353 (1957).
- 5) J. OWEN, *Proc. Roy. Soc. A* 227, 183 (1954-55).
- 6) *Atomic Energy Levels*, U.S. National Bureau of Standard Circular, Vol. 1 (1949) et Vol. 2 (1952).
- 7) R. TSCHUCHIDA et M. KOBAYASHI, *Bull. Chem. Soc. Japan* 73, 471 (1938).
- 8) E. U. CONDON et G. H. SHORTLEY, *Theory of Atomic Spectra* (Cambridge 1951), p. 179.
- 9) D. R. HARTREE, *Calculation of Atomic Structure* (N. Y. 1957), p. 173.
- 10) D. R. HARTREE, *J. Opt. Soc. Amer.* 45, 350 (1956).
- 11) C. K. JØRGENSEN, *J. Inorg. et Nucl. Chem.* 1, 301 (1955).

### Berichtigung

zu *Helvetica Physica Acta* 33, 697 (1960), Arbeit von H. ROHRER,  
fünfterunterste Zeile: lies Kopplungskonstante  $\alpha$  statt Kopplungskon-  
stante  $K$

viertunterste Zeile: lies  $T_c(\alpha)$  statt  $T_c(K)$

zu *Helvetica Physica Acta*, 33, 773 (1960), Arbeit von RES JOST.

Der letzte Satz auf p. 779 sollte auf Zeile 5 («als neuer Fall») durch die Formel auf p. 778 oben abgeschlossen werden.



## HELVETICA PHYSICA ACTA

VOLUMEN XXXIII

## INHALTSVERZEICHNIS — TABLE DES MATIÈRES

*Fasciculus I*

15. III. 1960

R. JAGGI und R. SOMMERHALDER: Messung der Eindringtiefe an supraleitenden Hohlkörpern . . . . .	1
E. FATUZZO: The Mechanism of the Reversal of the Spontaneous Polarization in $\text{LiH}_3(\text{SeO}_3)_2$ Single Crystals . . . . .	21
J. KERN et O. HUBER: Amélioration du plateau des compteurs Geiger-Müller à coque métallique et remplissage argon-alcool . . . . .	27
G. A. SPESCHA und M. J. O. STRUTT: Theoretische Überlegungen zur experimentellen Bestimmung der spontanen Photonenschwankungen . . . . .	53
G. A. SPESCHA und M. J. O. STRUTT: Experimentelle Bestimmung der spontanen Photonenschwankungen . . . . .	69

*Fasciculus II*

1. V. 1960

C. P. ENZ: Theory of the Magnetic Susceptibility of Crystals . . . . .	89
C. P. ENZ: Temperature Dependence of Magnetic Susceptibility. . . . .	115
J.-P. JAN, S. STEINEMANN et P. DINICHERT: Les paramètres du réseau et la densité du rubis. . . . .	123
B. SREDNIAVA: On the breadths of annihilation lines in copper and in gold. . . . .	131
HENRI RUEGG: Groupe mésonique et conservation de la parité . . . . .	143
BRUNO LÜTHI: Widerstandsänderung von Metallen in hohen Magnetfeldern . . . . .	161

*Fasciculus III*

15. VI. 1960

EDMOND GENEUX et BARBARA WANDERS-VINCENZ: Etude par la résonance magnétique dans des jets atomiques, d'états excités des atomes cadmium et zinc, et des ions cadmium II et zinc II . . . . .	185
M. NIKOLIĆ, Y. EISENBERG, W. KOCH, M. SCHNEEBERGER and H. WINZELER: Interactions of $K^-$ -Mesons at Rest in Nuclear Emulsions . . . . .	
V. The Multi-Nucleon Capture Mode. . . . .	221
W. KOCH, Y. EISENBERG, M. NIKOLIĆ, M. SCHNEEBERGER and H. WINZELER: Interactions of $K^-$ -Mesons at Rest in Nuclear Emulsions . . . . .	
VI. The Single Nucleon Capture Mode . . . . .	372

Fasciculus IV

1. VII. 1960

O. STEINMANN: Über den Zusammenhang zwischen den Wightmanfunktionen und den retardierten Kommutatoren . . . . .	257
J. SALADIN und P. MARMIER: Polarisations- und Streuexperimente mit 4 MeV-Protonen. . . . .	299

Fasciculus V

15. VIII. 1960

MANUEL CARDONA, WILLIAM PAUL, and HARVEY BROOKS: The Temperature Dependence of the Polarizability of the Free Carriers in Germanium and Silicon . . . . .	329
O. STEINMANN: Wightman-Funktionen und retardierte Kommutatoren II . . . . .	347
W. BEUSCH: Über Zweiquanten-Übergänge an Ba <sup>137</sup> . . . . .	363
P. DEBRUNNER und W. KÜNDIG: $\gamma$ - $\gamma$ -Korrelationsmessungen an <sup>152</sup> Sm, <sup>152</sup> Gd und <sup>154</sup> Gd: Spinzunordnung, Mischungsverhältnis und <i>g</i> -Faktor . . . . .	395
ENNIO FATUZZO: The Reversal of the Spontaneous Polarization in Guanidine Aluminium Sulfate Hexahydrate . . . . .	429
G. BUSCH und O. VOGT: Elektrische Leitfähigkeit und Halleffekt von Ge-Si-Legierungen . . . . .	437
JEAN MÜLLER und MARCEL RISI: Der Entropieverlauf in Supraleitern mit magnetischer Zulegierung . . . . .	459
GASTON FISCHER: Galvanomagnetic Effects in Three-Band Semiconductors – Experiments with <i>p</i> -Type SnSb . . . . .	463

Fasciculus VI/VII

1. X. 1960

Compte Rendu de la réunion de la Société Suisse de Physique. . . . .	489
ALBERT PERRIER: Méthode de mesures du pouvoir thermoélectrique intrinsèque (sans conducteur de référence) . . . . .	491
E. BRUN, St. HAFNER und P. HARTMANN: Elektrische Quadrupolwechselwirkungen in einigen Feldspäten . . . . .	495
E. BRUN, St. HAFNER und P. HARTMANN: Quadrupolwechselwirkungsenergie von Al <sup>27</sup> im Spinell (MgAl <sub>2</sub> O <sub>4</sub> ) . . . . .	496
K. A. MÜLLER: Verbotene $\Delta(M + m) = 0$ Übergänge im paramagnetischen Resonanzspektrum von Mn <sup>IV</sup> im SrTiO <sub>3</sub> und Mn <sup>2+</sup> im ZnS . . . . .	497
ENNIO FATUZZO: Effect of Pile Irradiation on the Dielectric Properties of Triglycine Sulfate Single Crystals . . . . .	501
F. HAENSSLER et L. RINDERER: Action d'un champ électrique sur l'état intermédiaire d'un superconducteur . . . . .	505
J. A. BEUN and G. J. GOLDSMITH: Electrical and Optical Properties of Zinc Sulfide Crystals in Polarized Light . . . . .	508
JEAN MÜLLER: Die Messung kleiner Wärmekapazitäten im Temperaturbereich von 1–10°K . . . . .	514
P. COTTI: Über die Durchmessersabhängigkeit der magnetischen Widerstandsänderung von In bei tiefen Temperaturen . . . . .	517

S. MIDDELHOEK: Ummagnetisierungsvorgänge in dünnen ferromagnetischen Ni-Fe-Schichten . . . . .	519
ALBRECHT RYTZ: Absolutmessung einiger Alphaenergien . . . . .	524
H. H. STAUB und H. WINKLER: Absolutmessung der Resonanzenergie der Reaktion $\text{Ni}^{58}(\text{p}, \gamma)\text{Cu}^{59}$ bei 1,84 MeV . . . . .	526
V. MEYER, H. H. MÜLLER, H. H. STAUB und R. ZURMÜHLE: $\alpha$ - $\gamma$ Winkelkorrelationsmessung am $\text{Be}^8$ -Kern . . . . .	528
E. JEANNET, CL. BOVET, J. ROSSEL et E. VAUCHER: Anomalies dans l'évaporation nucléaire du cuivre . . . . .	529
O. HUBER, L. SCHELLENBERG und H. WILD: Erste Messungen mit dem hochauflösenden Spektrometer neuer Bauart . . . . .	534
G. RIEPE und B. HAHN: Einige Ergebnisse zur Blasenbildung durch den $\alpha$ -Zerfall von $^{210}\text{Po}$ und durch schnelle Elektronen . . . . .	540
B. DAYTON, W. KOCH, M. NIKOLIĆ, and H. WINZELER: An External Proton Beam at the CERN Proton Synchrotron . . . . .	544
G. CVIJANOVICH, B. DAYTON, P. EGLI, B. KLAIBER, W. KOCH, M. NIKOLIĆ, R. SCHNEEBERGER und H. WINZELER: Vorläufige Resultate über Wechselwirkungen von PS-Protonen in Kernemulsionen . . . . .	546
V. GORGÉ, W. KOCH, W. LINDT, M. NIKOLIĆ, S. SUBOTIĆ-NIKOLIĆ, and H. Winzeler: Hypernuclei Produced by K-Interactions in Nuclear Emulsions General Characteristics and Non-Mesic Decays . . . . .	551
E. BALDINGER, W. CZAJA und A. Z. FAROOQI: $p$ - $n$ -Übergänge als Festkörper-Ionisations-Kammern . . . . .	551
G. JOYET: Mesure et discrimination de la radioactivité des cadrans lumineux. Dose-gonades . . . . .	557
P. HUBER, P. NIKLAUS und R. WAGNER: Inelastische Streuung von 14-MeV-Neutronen an schweren Kernen . . . . .	560
P. HUBER, C. POPPELBAUM und R. WAGNER: Messungen an einer Duo-Plasmatron Ionenquelle . . . . .	564
P. HUBER und F. WIDDER: Bestimmung des Reichweitespektrums schwach aktiver $\alpha$ -Präparate . . . . .	567
P. HUBER und W. HUNZINGER: Messung des differentiellen Neutronen-Streuquerschnittes an Sauerstoff-16 im MeV-Gebiet . . . . .	570
H. A. CHRIST: Messungen der chemischen Verschiebung von $^{17}\text{O}$ -Kernresonanzlinien . . . . .	572
H. R. BRUGGER, T. NIEWODNICZANSKI und M. P. STEIGER: $n'$ - $\gamma$ -Korrelation der unelastischen Neutronenstreuung I. Experimente an $^{24}\text{Mg}$ . . . . .	576
S. PRÊTRE, H. R. BRUGGER und M. P. STEIGER: $n'$ - $\gamma$ -Korrelation der unelastischen Neutronenstreuung II. Berechnungen . . . . .	583
P. EBERHARDT: Ein Trochoidenmassenspektrometer für kleine Edelgas-mengen . . . . .	588
J. GEISS, B. HIRT und H. OESCHGER: Tritium- und Helium-Gehalte in Meteoriten . . . . .	590
P. und A. EBERHARDT: Neon und andere Edelgase in Steinmeteoriten . . . . .	593
N. GRÖGLER, F. G. HOUTERMANS und H. STAUFFER: Über die Datierung von Keramik und Ziegel durch Thermolumineszenz . . . . .	595
F. G. HOUTERMANS, H. DEBRUNNER und W. LINDT: Registrierung der Nukleonenkomponente der kosmischen Strahlung am Jungfraujoch . . . . .	596

F. G. HOUTERMANS: Über die Erfüllung der «Maser»-Bedingung bei Zerfalls-Spektren von Molekülen . . . . .	597
R. L. FAVRE: Eléments de compensation d'un stabilisateur de tension continue réglable . . . . .	598
R. L. FAVRE: Circuit «porte» linéaire . . . . .	600
R. L. FAVRE: Modifications et performances d'un compteur d'impulsions UHF . . . . .	601
E. C. G. STUECKELBERG: The Sign of Absolute Temperature $T$ in Phenomenological Thermodynamics . . . . .	605
W. BAUMGARTNER und J. LINDER: Photmultiplier mit Sb-Na-K-Kathode . . . . .	608
W. ISSLER: Schalen gleicher Festigkeit . . . . .	611
P. KESSELRING: Transistorisierte Zeemanmodulation für Kernquadrupolresonanzen . . . . .	612
W. BEUSCH und R. MÜLLER: Ein überlastbarer Verstärker für hohe Impulsfrequenzen . . . . .	614
R. SOMMERHALDER: Freie Energie von $180^\circ$ -Wänden und Oberflächen im kubisch raumzentrierten Dipol-Gitter . . . . .	617
L. CHOLLET et J. ROSSEL: Etude expérimentale du polaron (Mesure de la mobilité électronique dans AgCl et AgBr) . . . . .	627
G. BUSCH und F. HULLIGER: Mineralien als Vorbilder für neue Halbleiterverbindungen . . . . .	657
B. LÜTHI und P. WYDER: A Monte-Carlo Calculation for a Size Effect Problem . . . . .	667
HEINRICH ROHRER: Druck- und Volumeneffekte in der Supraleitung . . . . .	675
H. DEBRUNNER, F. G. HOUTERMANS und W. LINDT: Der plötzliche, kurzzeitige Anstieg der kosmischen Strahlung vom 4. Mai 1960 nach der Registrierung der Nucleonenkomponente am Jungfraujoch . . . . .	706

*Fasciculus VIII*

15. XI. 1960

W. HEITLER: Einleitung . . . . .	709
J. M. JAUCH: Systems of Observables in Quantum Mechanics . . . . .	711
E. C. G. STUECKELBERG: Quantum Theory in Real Hilbert Space . . . . .	727
GUNNAR KÄLLÉN and JOHN TOLL: Integral Representations for the Vacuum Expectation Value of Three Scalar Local Fields . . . . .	753
RES JOST: Die Normalform einer komplexen Lorentztransformation . . . . .	773
L. O'RAIFEARTAIGH: The S-Matrix in the Non-local Field Theory of Arnous and Heitler . . . . .	783
H. FRÖHLICH: Space time reflexions, light quanta and heavy bosons. . . . .	803
N. KEMMER: On the Theory of Particles of Spin 1 . . . . .	829
C. P. ENZ und A. THELLUNG: Nullpunktsenergie und Anordnung nicht vertauschbarer Faktoren im Hamiltonoperator . . . . .	839
H. B. G. CASIMIR: A Note on Multipole Radiation . . . . .	849
M. FIERZ: Zur Anziehung leitender Ebenen im Vakuum . . . . .	855
GREGOR WENTZEL: On the Phase Transition of a Superconductor . . . . .	859
J. L. OLSEN and H. ROHRER: The Volume Dependence of the Electron Level Density and the Critical Temperature in Superconductors . . . . .	872
W. BALTENSPERGER and A. M. DE GRAAF: Long range interactions between magnetic moments in semiconductors . . . . .	881

G. BUSCH und O. VOGT: Magnetische Suszeptibilität von Ge-Si-Mischkristallen	889
A. COMUNETTI und P. HUBER: Bestimmung von Elektronen-Wanderungsgeschwindigkeiten in Gasmischungen	911
F. G. HOUTERMANS: Über <i>Maser-Wirkung</i> im optischen Spektralgebiet und die Möglichkeit absolut negativer Absorption für einige Fälle von Molekülspektren (Lichtlawine)	933
G. J. BÉNÉ: Forme et structure des raies de résonance magnétique dans les liquides aux très basses fréquences	941
C. PIRON, M. GAILLOUD, PH. ROSSELET, and M. BIASUTTI: Numerical Evaluation of the Pseudo-Tridents Production Cross-Section	945

## Fasciculus IX

31. XII. 1960

Compte rendu de la Réunion de la Société Suisse de Physique	953
R. EHRRAT et D. RIVIER: Sur la théorie des bandes d'énergie pour les métaux de transition de la première période	954
F. HULLIGER: Über den Bindungs- und Leitungscharakter von Verbindungen mit $\text{CdJ}_2$ -Struktur	959
T. FISCHER: Feldemission aus Silizium	961
Y. TIÈCHE: Hall-Effekt des flüssigen Quecksilbers	963
E. BRUN, S. HAFNER, H. LOELIGER und F. WALDNER: Zur paramagnetischen Resonanz von $\text{Cr}^{3+}$ in Spinell ( $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ )	966
P. KARTASCHOFF, J. BONANOMI et J. DE PRINS: Etalons de fréquence au césium, description et résultats	968
R. HUGUENIN et D. RIVIER: Effet Hall du Ni très pur à basse température	973
J. SEITZ, G. REINHOLD und R. MINKNER: Ein symmetrischer 4-MV-Kaskadengleichrichter zur Speisung eines Ionenbeschleunigers	977
L. PINTO HESPAÑOL, A. SAMMAN et G. VANDERHAEGHE: Etude du séchage et de la restitution des émulsions nucléaires à l'aide d'un polyéthylène glycol (carbowax)	983
P. DEBRUNNER, M. LAMBERT, A. PONCINI et J. W. SUNIER: Corrélations angulaires bêta-gamma des cascades $3^-(\beta) 2^+(\gamma) 0^+$ de l' $\text{Sb}^{124}$ et de l' $\text{Eu}^{152}$	985
H. P. HÄNNI: Methods of Target Preparation	987
E. MALAMUD et R. WEILL: Interactions électromagnétiques des électrons et positons de 620 MeV dans le propane	991
L. PINTO HESPAÑOL: Corrosion des traces photographiques dans les émulsions nucléaires pendant le fixage	994
A. HEYM: Interaction des muons de 0,2 à 1,3 GeV avec les électrons	995
R. RICAMO: Total neutron cross sections for intermediate nuclei around 4 MeV	997
T. FREDERKING und R. REIMANN: Restwiderstand von Gallium und Gallium-Legierungen	998
H. RISI et S. YUAN: Susceptibilité magnétique du Se et du Te	1002
C. A. BOVET et E. JEANNET: Développement automatique	1006
F. J. BLATT and H. G. SATZ: Resistivity of Thin Metallic Wires	1007
G. EMCH et R. LACROIX: Résonance paramagnétique de l'ion $\text{Cr}^{+3}$ dans un monocristal de $\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$	1021



# HELVETICA PHYSICA ACTA

VOLUMEN XXXIII

## AUTORENREGISTER — TABLE DES AUTEURS

### B

BALDINGER, E., CZAJA, W. und FAROOQI, A. Z., 551  
 BALTENSPERGER, W. and GRAAF, A. M. DE, 881  
 BAUMGARTNER, W. und LINDER, J., 608  
 BÉNÉ, G. J., 941  
 BEUN, J. A. and GOLDSMITH, G. J., 508  
 BEUSCH, W., 363  
 BEUSCH, W. und MÜLLER, R., 614  
 BIASUTTI, M., v. PIRON, C., 945  
 BLATT, F. J., and SATZ, H. G., 1003  
 BONANOMI, J., v. KARTASCHOFF, P., 968  
 BOVET, C. A., et JEANNET, E., 1004  
 BOVET, CL., v. JEANNET, E., 529  
 BROOKS, H., v. CARDONA, M., 329  
 BRUN, E., HAFNER, S., LOELIGER, H., und WALDNER, F., 966  
 BRUGGER, H. R., NIEWODNICZANSKI, T. und STEIGER, M. P., 576  
 BRUGGER, H. R., v. PRÊTRE, S., 583  
 BRUN, E., HAFNER, ST. und HARTMANN, P., 495, 496  
 BUSCH, G. und VOGT, O., 437, 889  
 BUSCH, G. und HULLIGER, F., 657

### C

CARDONA, M., PAUL, W., and BROOKS, H., 329  
 CASIMIR, H. B. G., 849

CHOLLET, L. et ROSSEL, J., 627  
 CHRIST, H. A., 572  
 Compte Rendu de la réunion de la Société Suisse de Physique, 489  
 COMUNETTI, A., und HUBER, P., 911  
 COTTI, P., 517  
 CVIJANOVICH, G., DAYTON, B., EGLI, P., KLAIBER, B., KOCH, W., NIKOLIĆ, M., SCHNEEBERGER, R., und WINZELER, H., 546  
 CZAJA, W., v. BALDINGER, E., 551

### D

DAYTON, B., KOCH, W., NIKOLIĆ, M., and WINZELER, H., 544  
 DAYTON, B., v. CVIJANOVICH, G., 546  
 DEBRUNNER, H., v. HOUTERMANS, F. G., 596  
 DEBRUNNER, H., HOUTERMANS, F. G., und LINDT, W., 706  
 DEBRUNNER, P., und KÜNDIG, W., 395  
 DEBRUNNER, P., LAMBERT, M., PONCINI, A., et SUNIER, J. W., 985  
 DE PRINS, J., v. KARTASCHOFF, P., 968  
 DINICHERT, P., v. JAN, J.-P., 123

### E

EBERHARDT, P., 588  
 EBERHARDT, P., und A., 593  
 EGLI, P., v. CVIJANOVICH, G., 546  
 EHRLAT, R., et RIVIER, D., 954

EISENBERG, Y., v. NIKOLIĆ, M., 221  
 EISENBERG, Y., v. KOCH, W., 237  
 EMCH, G., et LACROIX, R., 1017  
 ENZ, C. P., 89, 115  
 ENZ, C. P., und THELLUNG, A., 839

## F

FAROOQI, A. Z., v. BALDINGER, E., 551  
 FATUZZO, E., 21, 429, 501  
 FAVRE, R. L., 598, 600, 601  
 Fierz, M., 855  
 FISCHER, G., 463  
 FISCHER, T., 961  
 FREDERKING, T., und REIMANN, R.,  
 998  
 FRÖHLICH, H., 803

## G

GAILLOUD, M., v. PIRON, C., 945  
 GEISS, J., HIRT, B., und OESCHGER, H.,  
 590  
 GENEUX, E., et WANDERS-VINCENZ,  
 BARBARA, 185  
 GOLDSMITH, G. J., v. BEUN, J. A., 508  
 GORGÉ, V., KOCH, W., LINDT, W.,  
 NIKOLIĆ, M., SUBOTIĆ-NIKOLIĆ, S.,  
 and WINZELER, H., 551  
 GRAAF, A. M. DE, and BALTENSPE-  
 GER, W., 881  
 GRÖGLER, N., HOUTERMANS, F. G.,  
 und STAUFFER, H., 595

## H

HAENSSLER, F., et RINDERER, L., 505  
 HAFNER, St., v. BRUN, E., 495, 496  
 HAFNER, S., v. BRUN, E., 966  
 HAHN, B., v. RIEPE, G., 540  
 HÄNNI, H. P., 987  
 HARTMANN, P., v. BRUN, E., 495, 496  
 HEITLER, W., 709  
 HEYM, A., 995  
 HIRT, B., v. GEISS, J., 590  
 HOUTERMANS, F. G., v. GRÖGLER, N.,  
 595  
 HOUTERMANS, F. G., DEBRUNNER, H.,  
 und LINDT, W., 596  
 HOUTERMANS, F. G., 597, 933

HOUTERMANS, F. G., v. DEBRUNNER,  
 H., 706  
 HUBER, O., v. KERN, J., 21  
 HUBER, O., SCHELLENBERG, L., und  
 WILD, H., 534  
 HUBER, P., NIKLAUS, P., und  
 WAGNER, R., 560  
 HUBER, P., POPPELBAUM, C., und  
 WAGNER, R., 564  
 HUBER, P., und WIDDER, F., 567  
 HUBER, P., und HUNZINGER, W., 570  
 HUBER, P., v. COMUNETTI, A., 911  
 HUGUENIN, R., et RIVIER, D., 973  
 HULLIGER, F., v. BUSCH, G., 657  
 HULLIGER, F., 959  
 HUNZINGER, W., v. HUBER, P., 570

## I

ISSLER, W., 611

## J

JAGGI, R., und SOMMERHALDER, R., 1  
 JAN, J.-P., STEINEMANN, S., et  
 DINICHERT, P., 123  
 JAUCH, J. M., 711  
 JEANNET, E., BOVET, CL., ROSSEL, J.,  
 et VAUCHER, E., 529  
 JEANNET, E., v. BOVET, C. A., 1004  
 JOST, R., 773  
 JOYET, G., 557

## K

KÄLLÉN, G., and TOLL, J., 753  
 KARTASCHOFF, P., BONANOMI, J., et  
 DE PRINS, J., 968  
 KEMMER, N., 829  
 KERN, J., et HUBER, O., 21  
 Kesselring, P., 612  
 KLAIBER, B., v. CVIJANOVICH, G., 546  
 KOCH, W., v. NIKOLIĆ, M., 221  
 KOCH, W., EISENBERG, Y., NIKOLIĆ,  
 M., SCHNEEBERGER, M., and  
 WINZELER, H., 237  
 KOCH, W., v. DAYTON, B., 544  
 KOCH, W., v. CVIJANOVICH, G., 546  
 KOCH, W., v. GORGÉ, V., 551  
 KÜNDIG, W., v. DEBRUNNER, P., 395

## L

- LACROIX, R., v. EMCH, G., 1017  
 LAMBERT, M., v. DEBRUNNER, P., 985  
 LINDER, J., v. BAUMGARTNER, W., 608  
 LINDT, W., v. GORGÉ, V., 551  
 LINDT, W., v. HOUTERMANS, F. G., 596  
 LINDT, W., v. DEBRUNNER, H., 706  
 LOELIGER, H., v. BRUN, E., 966  
 LÜTHI, B., 161  
 LÜTHI, B., and WYDER, P., 667

## M

- MALAMUD, E., et WEILL, R., 991  
 MARMIER, P., v. SALADIN, J., 299  
 MEYER, V., MÜLLER, H. H., STAUB, H. H., und ZURMÜHLE, R., 528  
 MIDDELHOEK, S., 519  
 MINKNER, R., v. SEITZ, J., 977  
 MÜLLER, H. H., v. MEYER, V., 528  
 MÜLLER, J., 514  
 MÜLLER, J., und RISI, M., 459  
 MÜLLER, K. A., 497  
 MÜLLER, R., v. BEUSCH, W., 614

## N

- NIEWODNICZANSKI, T., v. BRUGGER, H. R., 576  
 NIKLAUS, P., v. HUBER, P., 560  
 NIKOLIĆ, M., EISENBERG, Y., KOCH, W., SCHNEEBERGER, M., and WINZELER, H., 221  
 NIKOLIĆ, M., v. KOCH, W., 237  
 NIKOLIĆ, M., v. DAYTON, B., 544  
 NIKOLIĆ, M., v. CVIJANOVICH, G., 546  
 NIKOLIĆ, M., v. GORGÉ, V., 551

## O

- OESCHGER, H., v. GEISS, J., 590  
 OLSEN, J. L., and ROHRER, H., 872  
 O'RAIFEARTAIGH, L., 783

## P

- PAUL, W., v. CARDONA, M., 329  
 PERRIER, A., 491  
 PINTO HESPAÑHOL, L., SAMMAN, A., et VANDERHAEGHE, G., 983

- PINTO HESPAÑHOL, L., 994  
 PIRON, C., GAILLOUD, M., ROSSELET, Ph., and BIASUTTI, M., 945  
 PONCINI, A., v. DEBRUNNER, P., 985  
 POPPELBAUM, C., v. HUBER, P., 564  
 PRÊTRE, S., BRUGGER, H. R., und STEIGER, M. P., 583

## R

- REIMANN, R., v. FREDERKING, T., 998  
 REINHOLD, G., v. SEITZ, J., 977  
 RICAMO, R., 997  
 RIEPE, G., und HAHN, B., 540  
 RINDERER, L., v. HAENSSLER, F., 505  
 RISI, H., et YUAN S., 1002  
 RISI, M., v. MÜLLER, J., 459  
 RIVIER, D., v. EHRAT, R., 954  
 RIVIER, D., v. HUGUENIN, R., 973  
 ROHRER, H., 675  
 ROHRER, H., v. OLSEN, J. L., 872  
 Rossel, J., v. JEANNET, E., 529  
 ROSSEL, J., v. CHOLLET, L., 627  
 ROSSELET, Ph., v. PIRON, C., 945  
 RUEGG, H., 143  
 RYTZ, A., 524

## S

- SALADIN, J., und MARMIER, P., 299  
 SAMMAN, A., v. PINTO HESPAÑHOL, L., 983  
 SATZ, H. G., v. BLATT, F. J., 1003  
 SCHELLENBERG, L., v. HUBER, O., 534  
 SCHNEEBERGER, M., v. NIKOLIĆ, M., 221  
 SCHNEEBERGER, M., v. KOCH, W., 237  
 SCHNEEBERGER, R., v. CVIJANOVICH, G., 546  
 SEITZ, J., REINHOLD, G., und MINKNER, R., 977  
 SOMMERHALDER, R., v. JAGGI, R., 1  
 SOMMERHALDER, R., 617  
 SPESCHA, G. A., und STRUTT, M. J., O., 53, 69  
 SREDNIAYA, B., 131  
 STAUB, H. H., und WINKLER, H., 526  
 STAUB, H. H., v. MEYER, V., 528  
 STAUFFER, H., v. GRÖGLER, N., 595  
 STEIGER, M. P., v. BRUGGER, H. R., 576

STEIGER, M. P., v. PRÊTRE, S., 583  
STEINEMANN, S., v. JAN, J.-P., 123  
STEINMANN, O., 257, 347  
STRUTT, M. J. O., v. SPESCHA, G. A.,  
53, 69  
STUECKELBERG, E. C. G., 605, 727  
SUBOTIĆ-NIKOLIĆ, S., v. GORGÉ, V.,  
551  
SUNIER, J. W., v. DEBRUNNER, P., 985

## T

TIÈCHE, Y., 963  
TOLL, J., v. KÄLLÉN, G., 753

## V

VANDERHAEGHE, G., v. PINTO HES-  
PANHOL, L., 983  
VAUCHER, E., v. JEANNET, E., 529  
VOGT, O., v. BUSCH, G., 437, 889

## W

WAGNER, R., v. HUBER, P., 560  
WAGNER, R., v. HUBER, P., 564

WALDNER, F., v. BRUN, E., 966  
WANDERS-VINCENZ, BARBARA,  
v. GENEUX, E., 185  
WEILL, R., v. MALAMUD, E., 991  
WENTZEL, G., 859  
WIDDER, F., v. HUBER, P., 567  
WILD, H., v. HUBER, O., 534  
WINKLER, H., v. STAUB, H. H., 526  
WINZELER, H., v. NIKOLIĆ, M., 221  
WINZELER, H., v. KOCH, W., 237  
WINZELER, H., v. DAYTON, B., 544  
WINZELER, H., v. CVIJANOVICH, G.,  
546  
WINZELER, H., v. GORGÉ, V., 551  
WYDER, P., v. LÜTHI, B., 667

## Y

YUAN, S., v. RISI, H., 1002

## Z

ZURMÜHLE, R., v. MEYER, V., 528





